N° d'ordre : 630

THÈSE

présentée

A L'UNIVERSITÉ PAUL SABATIER DE TOULOUSE

pour obtenir

le grade de DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

par

Gilles MURATET

M. Sc. A. de l'Université de Sherbrooke
Ingénieur I. G. C.
Licencié ès Sciences

ANALYSE DU FONCTIONNEMENT D'UNE COLONNE D'EXTRACTION A DISQUES ROTATIFS

Soutenue le 27 Septembre 1974 devant la Commission d'Examen

Jury : MM.	H. GARDY	Président
	F. COUSSEMANT	Examinateurs
	M. ENJALBERT	
	P. LE GOFF	
	L. LE LETTY	
	Y. SEVELY	

T H E S E

présentée

A L'UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE

pour obtenir

le grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

Gilles MURATET

M. Sc. A. de l'Université de SHERBROOKE

Ingénieur I.G.C.

Licencié ès Sciences

ANALYSE DU FONCTIONNEMENT D'UNE COLONNE D'EXTRACTION A DISQUES ROTATIFS

---

soutenue le 27 Septembre 1974 devant la Commission d'Examen

JURY : MM. H. GARDY — Président

F. COUSSEMANT
M. ENJALBERT
P. LE GOFF
L. LE LETTY
Y. SEVELY

— Examinateurs

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE

DIRECTION DE L'UNIVERSITE

M. LARENG ..... Président
M. MATHIS ..... 1er Vice-Président
M. MARTIN ..... 2ème Vice-Président

U.E.R. SCIENTIFIQUES

HONORARIAT

M. BEDOS ..... Professeur honoraire
M. BLAIZOT ..... Doyen honoraire
M. CAPDECOMME ..... Doyen honoraire, Recteur honoraire, Correspondant de l'Institut
M. DIEHL ..... Professeur honoraire
M. DUPOUY ..... Membre de l'Institut, Doyen honoraire, Directeur Général honoraire du C.N.R.S., Professeur honoraire
M. DURAND Emile ..... Doyen honoraire
M. ESCANDE ..... Professeur honoraire, Membre de l'Institut
M. GAUSSEN ..... Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut
M. JACQUES ..... Professeur honoraire
M. MASDUPUY ..... Professeur honoraire
M. MATHIS ..... Doyen honoraire
M. MIGNONAC ..... Professeur honoraire
M. MORQUER ..... Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut
M. SECONDAT ..... Professeur honoraire
M. TEISSIE-SOLIER ..... Professeur honoraire
M. VANDEL ..... Professeur honoraire, Membre de l'Institut

PROFESSEURS

M. CASTERAS ..... Géooogie, Correspondant de l'Institut
M. CAPDECOMME ..... Minéralogie, Correspondant de l'Institut
M. GALLAIS ..... Chimie, Membre de l'Institut
M. DURAND Emile ..... Physique
M. FERT ..... Physique
M. LESBRE ..... Chimie Organique
M. HURON ..... Mathématiques appliquées
M. MARGULIS ..... Pédologie
P. TRICHE ..... Chimie analytique et spectrographie
M. LEDOUX ..... Zoologie appliquée
M. RIVALS ..... Agriculture
M. PERRIER ..... Physique
M. MATHIS ..... Chimie

CONSEILS PAR SECTION DE SPECIALITE

SECTION DE L'INSTITUT

M. LAZENO ..... Président
M. MATHIS ..... 1er Vice-Président
M. MARTIN ..... 2ème Vice-Président

A. - RELATIONS

HONORAIRES

M. BUROS ..... Professeur honoraire
M. BLAIZOT ..... Doyen honoraire
M. CHAUSCOMBE ..... Doyen honoraire, Docteur honoraire, Correspondant de l'Institut
M. LIEBL ..... Professeur honoraire
M. DUCOUT ..... Membre de l'Institut, Doyen honoraire, Directeur général honoraire du C.N.R.S., Professeur honoraire
M. DURAND EMILE ..... Doyen honoraire
M. BOCHARDE ..... Professeur honoraire, Membre de l'Institut
M. LAUSSEN ..... Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut
M. LAPORTE ..... Professeur honoraire
M. MASQUIER ..... Professeur honoraire
M. MATHIS ..... Doyen honoraire
M. MIGNONAC ..... Professeur honoraire
M. ROUSSER ..... Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut
M. SCHERMAT ..... Professeur honoraire
M. TEISSIE-SOULE ..... Professeur honoraire
M. VANTEL ..... Professeur honoraire, Membre de l'Institut

PROFESSEURS

M. CASTERAS ..... Géologie, Correspondant de l'Institut
M. CAZENEUVE ..... Minéralogie, Correspondant de l'Institut
M. CHALAIS ..... Chimie, Membre de l'Institut
M. COMBES EMILE ..... Physique
M. COMBES ..... Physique
M. TERRE ..... Physique
M. IRIGOYEN ..... Chimie Organique
M. BUROS ..... Mathématiques appliquées
M. CAZENEUVE ..... Pétrologie
M. TRICOT ..... Chimie analytique, et spectrographie
M. LEBOUCHER ..... Zoologie appliquée
M. LIVAIS ..... Agriculture
M. FERRIER ..... Physique
M. GUINIER ..... Géologie

M. ORLIAC ..... Géochimie et minéralogie
M. LAFOURCADE ..... Physique
M. ANGELIER ..... Zoologie
Mlle de FERRE ..... Botanique
M. FARRAN ..... Minéralogie et géotechnique
M. LAUDET ..... Physique théorique et calcul numérique
M. SERFATY ..... Biologie animale
M. LAGASSE ..... Electrotechnique
M. BLANC ..... Physique nucléaire
M. LEREDDE ..... Botanique
M. LELUBRE ..... Géologie
M. TROCHAIN ..... Botanique
M. LALAGUE ..... Mathématiques générales
M. BOUIGUE ..... Astronomie
M. COUCHET ..... Physique
M. ASSELINEAU ..... Chimie biologique
M. MAURET ..... Chimie systématique
M. AGID ..... Physiologie
M. MONTANT ..... Cryptogamie
M. GAUTIER ..... Physique
M. CRUMEYROLLE ..... Mathématiques
M. GOURINARD ..... Géologie
M. PULOU ..... Minéralogie
M. CAMBOU ..... Physique spatiale
M. LACOSTE ..... Electrotechnique
M. THIBAULT ..... Mécanique rationnelle et appliquée
M. MASCART ..... Mathématiques
M. MEDIONI ..... Psychophysiologie
M. RAYNAUD Pierre ..... Physiologie animale
M. ZALTA ..... Chimie biologique
M. SEVELY ..... Electrotechnique
M. POMMIEZ ..... Mathématiques
M. REY Paul ..... Biologie végétale
M. SICARD ..... Biologie génétique
M. COULOMB ..... Physique
M. TRINQUIER ..... Physique
M. MARONI ..... Chimie
M. BEETSCHEN ..... Biologie générale
M. DERACHE ..... Physiologie animale
M. SATGE ..... Chimie organique
M. LATTES ..... Chimie
M. VEDRENNE ..... Géophysique
M. DURAND-DELGA ..... Géologie
M. CARRARA ..... Physique
M. JEANNIN ..... Chimie minérale
M. MAHENC ..... Chimie
M. MIROUSE ..... Géologie
M. BITSCH ..... Zoologie
M. DEGEILH ..... Physique
M. MARTIN J-C. ..... Génie électrique
M. REY Gérard ..... Electronique, Electrotechnique automatique

PROFESSEURS ASSOCIES

M. ANDERSON ..... Physique spatiale

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. PICCA ..... Physique
M. MERIC ..... Mathématiques appliquées
Mme LECAL ..... Zoologie
M. PILOD ..... Physique
M. LARROQUE ..... Physique
M. BARRANS ..... Chimie
Mlle LAPEYRE ..... Mathématiques - Informatique
M. BERTRAND ..... Chimie
M. DESQ ..... Mathématiques
M. ROCARD ..... Electronique
P. POILBLANC ..... Chimie
M. TOUZE ..... Physiologie végétale
M. FRASNAY ..... Mathématiques
M. CASSAGNAU ..... Zoologie
M. GUERIN ..... Mathématiques
M. PESCIA ..... Physique
M. SOUQUET ..... Géologie
M. SCHNEIDER ..... Biologie cellulaire
M. DE LOTH ..... Chimie physique
M. SAPORTE ..... Physique
M. PERENNOU ..... Informatique
M. THENOZ ..... Génie civil
M. CAUSSINUS ..... Mathématiques appliquées
M. DURAND Philippe ..... Physique
M. CASTAN ..... Informatique
M. REME ..... Mesures physiques
M. FONTAN ..... Physique nucléaire
M. BAUDRAS ..... Chimie biologique
M. CALVET ..... Mécanique des fluides
M. PAGANI ..... Physique
M. BEAUFILS ..... Informatique
M. BERTHELEMY ..... Zoologie
M. TERJANIAN ..... Mathématiques

MAITRES DE CONFERENCES

M. ATTEIA ..... Mathématiques
M. CUPPENS ..... Mathématiques
Mlle BARBANCE ..... Mathématiques
M. VERDIER Pierre ..... Physique
M. GILLY ..... Génie mécanique
M. COTTU ..... Génie mécanique
M. ROUTIE ..... Génie chimique
M. MARAL ..... Physique
M. HURAUX ..... Physique

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546624_0015

M. LEGRAND ..... Génie civil
M. ABATUT ..... Electronique, électrotechnique, automatique
M. SOTIROPOULOS ..... Chimie organique
Mme GERVAIS ..... Chimie inorganique
M. BONEL ..... Chimie
M. MAUSS ..... Mécanique
M. BANCEL ..... Mathématiques
M. JOSSERAND ..... Mesures physiques
M. BETOURNE ..... Informatique
M. CAMPAN ..... Psychophysiologie
M. CLERC ..... Mécanique
M. GRIFONE ..... Mathématiques
M. ETTINGER ..... Mathématiques
M. LETAC ..... Mathématiques
M. BONNET Louis ..... Biologie
M. LOUARN ..... Génétique

MAITRE DE CONFERENCES ASSOCIE

M. BACCAR ..... Chimie organique

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. PRADINES ..... Mathématiques
M. NGUYEN THANH VAN ..... Mathématiques
M. GALINIER Michel ..... Informatique

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE TOULOUSE

PROFESSEURS

M. NOUGARO ..... Hydraulique générale et appliquée
M. GARDY ..... Génie chimique
M. BIREBENT ..... Electronique appliquée
M. VOIGT ..... Chimie minérale
M. MONTEL ..... Chimie physique et électrochimie
M. THIRRIOT ..... Hydrodynamique
M. GRUAT ..... Mécanique des fluides (hydraulique)
M. BUGAREL ..... Génie chimique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. HAMANT ..... Botanique
Mlle BERDUCOU ..... Physiologie végétale
M. DAT ..... Mécanique des fluides
M. FALLOT ..... Biologie végétale (viticulture et arboriculture
M. TRUCHASSON ..... Mécanique
M. HOFFMANN ..... Electronique
M. ENJALBERT ..... Chimie
M. MARTY ..... Physique industrielle
M. LEFEUVRE ..... Electronique
M. ANGELINO ..... Génie chimique
M. DABOSI ..... Métallurgie

MAITRES DE CONFERENCES

M. MATHIEU ..... Chimie analytique
M. TRANNOY ..... Physique
M. CASTAGNETTO ..... Mathématiques
M. GILOT ..... Génie chimique
M. CALMON ..... Techniques agricoles
M. MATHEAU ..... Electronique

CHARGE D'ENSEIGNEMENT

M. NOAILLES ..... Informatique

INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES APPLIQUEES DE TOULOUSE

PROFESSEURS

M. ROQUES ..... Chimie industrielle
M. GRATELOUP ..... Génie électrique
M. MASO ..... Génie civil
M. MIRA ..... Génie électrique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. COLLETTE ..... Physique
M. FAGET ..... Physique
M. DURAND Gilbert ..... Chimie
M. SCHUTTLER ..... Physique

MAITRES DE CONFERENCES

M. LETURCQ ..... Génie électrique
M. SIRIEYS ..... Génie civil
M. BROUSSEAU ..... Physique
M. BESOMBES-VAILHE ..... Chimie
M. VERDIER Alain ..... Chimie

CHARGE D'ENSEIGNEMENT

M. LACAZE ..... Mathématiques

o

o o

ADMINISTRATION

M. PRINEAU ..... Secrétaire général de l'Université Paul Sabatier

Liste établie le 30 Avril 1974

Aux Miens

Je voudrais exprimer ma gratitude à Monsieur H. GARDY, Directeur de l'Institut du Génie Chimique, et à Monsieur le Professeur M. ENJALBERT, pour la confiance qu'ils m'ont témoignée, pour leurs conseils et leurs encouragements, et pour les importants moyens de calcul auxquels ils m'ont donné accès.

En encourageant les nombreux contacts que j'ai eus avec les membres de son équipe de recherche, Monsieur le Professeur H. ANGELINO a beaucoup contribué à la réalisation de ce travail, qu'il me permette de lui exprimer ici ma reconnaissance.

Monsieur F. COUSSEMANT, Professeur à l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Paris, Monsieur P. LE GOFF, Professeur à l'Ecole Nationale Supérieure des Industries Chimiques, Monsieur L. LE LETTY, Responsable de recherche au CERT-DERA et Monsieur Y. SEVELY, Professeur à l'Université Paul Sabatier, ont bien voulu examiner ce mémoire et siéger au jury de thèse, qu'ils veuillent bien accepter le témoignage de ma reconnaissance.

Enfin, ce travail doit beaucoup à tous les chercheurs de l'Institut avec qui j'ai eu l'occasion de travailler, et en particulier à MM. J. LAZAR, A. BORRELL, W. ARTHAYUKTI et J-B. GROS, à chacun d'eux, je tiens à exprimer mes sincères remerciements.

S O M M A I R E

Pages

INTRODUCTION 1

CHAPITRE I - GENERALITES

L'extraction liquide-liquide 4
Représentation du fonctionnement d'une colonne 6
Le matériel expérimental 11

PREMIERE PARTIE : METHODES NUMERIQUES

CHAPITRE II - METHODES D'IDENTIFICATION

Principe des méthodes utilisées 17
Méthodes d'optimisation 18
Méthode des moments 24

CHAPITRE III - TRANSFORMATION DISCRETE DE FOURIER

L'algorithme FFT 27
Relation avec la transformation de FOURIER 28
Exemple de repliement du spectre 30
Théorème de PARSEVAL et son application 31
Programmation de l'algorithme 34

CHAPITRE IV - INTEGRATION NUMERIQUE DU MODELE DE MIYAUCHI

Discrétisation des équations 37
Résolution du système d'équations 39
Précision de la méthode 40

.../...

DEUXIEME PARTIE : ETUDE A L'AIDE DE TRACEURS

CHAPITRE V - MODELES MATHEMATIQUES

Modèles continus et modèles discrets 44
Comparaison des modèles 47

CHAPITRE VI - ANALYSE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Modèle piston diffusionnel 51
Modèle piston diffusionnel modifié 52
Modèle piston diffusionnel avec retard 54
Modèle à bacs en cascade 55
Modèle à bacs avec retour 55
Modèle à quatre paramètres 58
Conclusions 59

TROISIEME PARTIE : ETUDE DES PROFILS DE CONCENTRATION

CHAPITRE VII - SENSIBILITE DES PARAMETRES DU MODELE DE MIYAUCHI

Principe de l'étude 65
Influence du facteur d'extraction 67
Influence du coefficient de partage 68
Influence du saut de concentration 69
Influence d'une non-linéarité de la relation d'équilibre 70
Influence d'une variation du produit $K_x a$ 71
Influence d'une variation de retenue 71
Influence des erreurs de mesure 73
Conclusions sur la sensibilité des paramètres du modèle 74

CHAPITRE VIII - EXPLOITATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Identification avec le modèle de MIYAUCHI 77
Les effets d'extrémité 80
Etude locale des profils 82
Conclusions 85

.../...

CONCLUSIONS 87

BIBLIOGRAPHIE 90

NOMENCLATURE 94

-:-:-:-:-:-:-:-

INTRODUCTION

Dans le cadre du laboratoire d'étude des transferts en milieu dispersé dirigé par Monsieur le Professeur ANGELINO, Monsieur A. BORREL s'est occupé de l'analyse du fonctionnement d'une colonne d'extraction liquide-liquide. A la même époque, l'auteur de ce mémoire travaillait dans l'équipe d'analyse fonctionnelle des procédés dirigée par Monsieur le Professeur ENJALBERT, sur des problèmes de comportement dynamique d'installation, de modèlisation et d'identification paramétrique. Une étroite collaboration avec A. BORRELL a été à l'origine de la présente étude.

La mise au point de méthodes de traitement des résultats expérimentaux obtenus par A. BORRELL, qui a été l'objet du travail commun, a fait apparaître un certain nombre de questions liées à la validité des modèles mathématiques utilisés et à la nature de l'information contenue dans les résultats expérimentaux. C'est en cherchant à approfondir ces deux questions que s'est poursuivie l'étude présentée ici. Ce mémoire rapporte plus particulièrement la contribution de son auteur à l'entreprise commune, A. BORRELL ayant exposé par ailleurs[27] les résultats de son propre travail.

Après un chapitre de généralités sur l'extraction liquide-liquide et sa modélisation, ce mémoire est divisé en trois parties.

La première partie présente les méthodes numériques utilisées au cours de l'étude des modèles et du traitement des résultats expérimentaux. Elle comprend trois chapitres traitant de l'identification paramétrique, de l'utilisation des transformées discrètes de FOURIER et de l'intégration numérique du modèle d'extraction de MIYAUCHI.

La deuxième partie concerne le traitement des résultats obtenus en injectant dans la colonne une impulsion d'un traceur. Dans un premier chapitre on montre qu'une réponse impulsionnelle permet de distinguer le

modèle à bacs en cascade du modèle piston diffusionnel quand le mélange longitudinal est important, mais qu'elle ne permet pas de déterminer les conditions aux limites à adopter avec le modèle piston diffusionnel. L'exploitation des résultats expérimentaux est abordée dans le deuxième chapitre : l'utilisation de plusieurs modèles d'écoulement montre que les réponses impulsionnelles expérimentales, obtenues avec la colonne étudiée, ne contiennent pas suffisamment d'information pour permettre de caractériser plus de deux paramètres dans un modèle.

La troisième partie concerne l'interprétation des mesures de profil de concentration à l'aide du modèle de MIYAUCHI. L'identification conduit à supposer l'exactitude de plusieurs hypothèses concernant le fonctionnement de la colonne, et à admettre la validité d'un certain nombre de mesures. Comme, par ailleurs, la signification des résultats du traitement dépend de l'exactitude de ces diverses hypothèses, un premier chapitre est consacré à l'estimation de l'influence d'éventuels écarts. Le traitement des profils expérimentaux intervient dans le chapitre suivant où il est montré que les hypothèses concernant l'uniformité des phénomènes le long de la colonne ne sont vérifiées que de manière grossière ; ce qui enlève beaucoup de signification aux valeurs des paramètres identifiés.

En conclusion de cette étude la validité du modèle de MIYAUCHI pour décrire le fonctionnement d'une colonne d'extraction à disques rotatifs est mise en doute.

o

o o

- C H A P I T R E I -

GENERALITES

— o —

I - L'EXTRACTION LIQUIDE-LIQUIDE.-

L'extraction liquide-liquide est une méthode de séparation des constituants d'un mélange liquide, à l'aide d'un solvant spécifique du produit à extraire, immiscible avec le mélange à traiter. La première étape de cette opération consiste en une mise en contact du solvant avec le mélange initial : deux phases sont alors en présence, et il se produit un transfert du constituant à extraire vers la phase solvant. La deuxième étape consiste à séparer les deux phases par décantation pour obtenir d'une part le mélange initial appauvri, et d'autre part le solvant enrichi.

La quantité transférable au cours de la mise en contact des phases est généralement limitée par l'existence d'un équilibre qui interdit un épuisement complet du mélange initial ; ceci constitue une difficulté qui peut être résolue de plusieurs manières. La première technique, schématisée sur la figure 1-A, consiste à traiter plusieurs fois le mélange avec le solvant pur, jusqu'à ce qu'une récupération suffisante ait été obtenue. Une deuxième solution, voisine de la précédente et schématisée sur la figure 1-B, consiste à faire circuler le solvant à contre-courant du mélange à traiter. Le solvant pur est introduit dans le dernier étage d'extraction, où il achève d'épuiser un mélange déjà appauvri. Il est ensuite utilisé dans l'étage précédent où il est mis en contact avec un mélange un peu plus riche, donc capable de lui céder du soluté ; et ceci se répète jusqu'à l'étage d'entrée du mélange initial. Cette méthode utilise les propriétés d'un échange à contre-courant pour limiter la quantité de solvant utilisé ; comme la première, elle comporte une étape de séparation après chaque étape de mise en contact. L'utilisation d'une colonne dans laquelle les deux phases circulent à contre-courant, du fait de leur différence de densité, permet de réaliser une séparation en une seule étape de mise en contact suivie d'une seule décantation. Dans ces colonnes, l'une des phases est dispersée, sous forme de gouttes, au sein de l'autre qui se présente comme un milieu continu. Dans le schéma de la figure 1-C, le solvant est représenté comme étant la phase montante et dispersée ; les trois autres combinaisons existent également. La séparation se fait par décantation au niveau de la sortie de la phase dispersée.

Pour améliorer l'efficacité des extracteurs, il est intéressant d'accroître autant que possible la vitesse du phénomène d'échange, ceci est obtenu en utilisant une agitation mécanique qui a pour rôle d'augmenter le coefficient d'échange et l'aire de contact entre les phases. Dans les appareils à étages, cette agitation se fait de manière classique ; elle est plus difficile à réaliser dans les colonnes, et plusieurs dispositifs sont actuellement utilisés : garnissage contre lequel la phase dispersée se divise, plateaux perforés jouant le même rôle et souvent associés à une pulsation du liquide, petits agitateurs ou disques, fixés sur un axe traversant longitudinalement la colonne. La colonne d'extraction à disques rotatifs, qui a fait l'objet de ce travail, n'est donc qu'un exemple d'extracteur parmi beaucoup d'autres.

Les effets de l'agitation sont nombreux, et tous ne sont pas bénéfiques ; ainsi il existe une taille limite des gouttes en dessous de laquelle les transferts se font mal et la séparation par décantation devient difficile ; un autre effet néfaste est le mélange longitudinal qui est créé dans les colonnes, et qui fait perdre une partie des avantages d'un échange continu à contre-courant. La complexité des phénomènes d'agitation a un double effet : d'une part elle rend très délicats les calculs prévisionnels d'installations, et d'autre part elle empêche de déterminer avec précision les raisons pour lesquelles un appareil est meilleur qu'un autre, et comment il pourrait encore être amélioré. C'est en considérant ces deux objectifs, meilleure connaissance des phénomènes physiques, et recherche de modèles extrapolables, que la présente étude a été entreprise.

II - REPRESENTATION DU FONCTIONNEMENT D'UNE COLONNE.-

Il est classique de distinguer deux phénomènes dans le fonctionnement d'une colonne d'extraction : d'une part l'écoulement de chacune des phases, et d'autre part le transfert à l'interface. Tous deux participent à l'opération globale par laquelle le produit à extraire rentre dans la colonne au sein du mélange initial, et en ressort dilué dans le solvant. Tous les modèles mathématiques traduisant le comportement d'une colonne rendent compte de ces deux phénomènes de manière plus ou moins simplifiée.

Modèles continus

La représentation la plus simple consiste à supposer pour chaque phase l'existence d'un écoulement piston et une complète homogénéité dans tout plan perpendiculaire à l'écoulement ; le débit de produit transféré à l'interface est supposé proportionnel à l'écart de concentration par rapport à l'équilibre, à l'aire interfaciale et à un coefficient d'échange. Le comportement d'une colonne est alors décrit par le modèle classique :

$$\begin{aligned} -\frac{dx}{dz} + \frac{K_x aL}{D_x}(x^* - x) &= 0 \\ \frac{dy}{dz} + \frac{K_x aL}{D_y}(x - x^*) &= 0 \end{aligned} \qquad (1)$$

En supposant de plus que le produit $K_x a$ conserve une valeur constante le long de la colonne, ce modèle décrit l'opération avec deux paramètres qui peuvent être ceux figurant dans les équations (1), ou bien le rapport des débits et le nombre d'unités de transfert $N_x = (K_x aL)/D_x$.

Les profils de concentration mesurés dans la phase continue d'une colonne d'extraction par GEANKOPLIS et HIXSON en 1950[28] et par GEANKOPLIS, WELLS et HAWK en 1951[29] montrent un écart par rapport à ceux prévus par le modèle (1) . Ils présentent notamment un saut de concentration à l'entrée de la phase continue, que NEWMAN en 1952[30] attribue à un mélange longitudinal au sein de la colonne. Peu de temps après plusieurs auteurs étudient un modèle d'écoulement à travers un appareil, dans lequel un phénomène de diffusion, analogue à la diffusion moléculaire,

se superpose à l'écoulement piston. Le problème des conditions aux limites à adopter avec l'équation différentielle du deuxième ordre utilisée par ce modèle piston diffusionnel est abordé en 1953 par DANCKWERTS[31] puis repris en 1956 par WEHNER et WILHELM[32]. En 1957 LEVENSPIEL et SMITH[7] donnent une liste de dix publications sur ce sujet.

L'utilisation du modèle piston diffusionnel pour la description du comportement d'une colonne d'extraction liquide-liquide est proposée en 1957 par MIYAUCHI et VERMEULEN[33,34] dans un rapport à diffusion restreinte de la Commission à l'Energie Atomique des Etats-Unis. Ce modèle est rendu public par SLEICHER[35] en 1959, puis son étude est reprise par MIYAUCHI et VERMEULEN[36] en 1963. A l'hypothèse de l'écoulement piston nécessaire à l'établissement du modèle (1), le modèle piston-diffusionnel substitue les deux hypothèses suivantes (voir aussi l'article de SLEICHER[35]).

- Le mélange axial peut être représenté par une loi analogue à la loi de FICK, faisant intervenir un coefficient de "diffusion" constant le long de la colonne.

- Les sections de passage des phases sont constantes le long de la colonne (vitesses constantes).

Il se présente sous la forme suivante

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{D}_x}{U_x L}\frac{d^2x}{dz^2} - \frac{dx}{dz} + \frac{K_x aL}{D_x}(x^* - x) &= 0 \\ \frac{\mathcal{D}_y}{U_y L}\frac{d^2y}{dz^2} + \frac{dy}{dz} + \frac{K_x aL}{D_y}(x - x^*) &= 0 \end{aligned} \qquad (2)$$

En supposant de surcroit que le produit $K_x a$ est constant le long de l'appareil, ce modèle caractérise le comportement d'une colonne par quatre nombres sans dimension : le nombre d'unités de transfert N_x, le rapport des débits, et deux nombres de PECLET $P_x = U_x L/\mathcal{D}_x$ et $P_y = U_y L/\mathcal{D}_y$. Pour intégrer ces équations il faut leur adjoindre des conditions aux limites : celles proposées par DANCKWERTS[31] supposent que le mélange longitudinal intervient uniquement dans le domaine limité par les cotes $z = 0$ et $z = 1$ et qu'il est nul en dehors (écoulement piston) ; elles ont pour expressions :

$$x(0^+) = x_e + \frac{1}{P_x} \frac{dx}{dz}(0^+)$$

$$\frac{dx}{dz}(1) = 0$$

$$y(1^-) = y_e - \frac{1}{P_y} \frac{dy}{dz}(1^-) \qquad (3)$$

$$\frac{dy}{dz}(0) = 0$$

En présentant le modèle (2) SLEICHER indique que lorsque la phase dispersée se présente sous forme de gouttes de diamètres différents, leurs vitesses de passage sont également différentes et ceci crée une cause de mélange longitudinal qui n'est pas prise en compte par le modèle piston diffusionnel. Entre autres différences, ce mécanisme ne provoque pas de saut de concentration à l'entrée de la phase dispersée. Cette considération a conduit OLNEY[37] à proposer un modèle plus complexe dans lequel la phase dispersée est décrite par la distribution du diamètre de ses gouttes et par deux relations liant vitesse et coefficient d'échange au diamètre. Dans le but d'obtenir une description plus exacte de l'écoulement des phases, des auteurs ont proposé des modèles dans lesquels il est tenu compte de l'existence de zones mortes au stagnantes[38], ou encore de passages préférentiels, dont l'effet s'ajoute au mécanisme piston-diffusionnel. D'autres chercheurs tels que LETAN et KEHAT[39,40] ont attribué au sillage entraîné par les gouttes un rôle capital dans le mélange longitudinal de la phase continue et dans le mécanisme d'échange.

Parallèlement à cette remise en cause du modèle d'écoulement piston diffusionnel, il y a un ensemble important d'études concernant le phénomène de transfert. Des études photographiques montrent que l'hypothèse d'une constance de l'aire interfaciale le long de la colonne n'est pas admissible pour certaines catégories de colonnes[41]. La cause peut en être aussi bien une variation des diamètres de gouttes qu'une variation de la retenue de phase dispersée le long de la colonne. Cette remise en cause du modèle d'échange porte également sur la constance du coefficient d'échange. Dans un article de synthèse, HEERTJES et de NIE[42] citent de nombreuses études mettant en évidence l'importance de l'échange pendant la période de formation de la goutte. Ils indiquent également l'importance du phénomène de traînée dans la

résistance à l'échange du côté de la phase continue. Ces difficultés à traduire le phénomène d'échange par une loi simple sont augmentées par d'éventuelles instabilités aux interfaces[43] qui modifient en fonction des concentrations le comportement des couches limites. Cet ensemble d'études invite fortement le chercheur à considérer avec méfiance l'hypothèse de la constance du produit $K_x a$ et à envisager sa variation le long de la colonne.

Modèles à étages

A côté des modèles d'écoulement continus, un ensemble de modèles à étages a été développé. Il est connu depuis longtemps que le phénomène de mélange axial est représenté de manières très voisines par le modèle piston-diffusionnel et par un modèle comportant N bacs parfaitement agités placés en cascade[44, 45]. Pour un nombre de bacs supérieur à quelques unités, le nombre de PECLET donnant un modèle équivalent à N bacs en cascade est donné par l'une des deux relations

$$P_e \simeq 2\,(N - 1) \qquad (4)$$

pour le modèle piston-diffusionnel fermé-fermé (conditions aux limites de DANCKWERTS) et

$$P_e \simeq 2\,N \qquad (5)$$

pour le modèle piston-diffusionnel infini. Toutefois ce modèle n'est guère pratique pour traduire l'écoulement dans une colonne d'extraction car le choix du nombre d'étage impose un même nombre de PECLET à l'écoulement de chaque phase. Pour augmenter la souplesse de cette représentation, le comportement de chaque phase est décrit par un modèle à N bacs en cascade avec un courant de retour[46] dont le débit est δ fois le débit net dans le sens direct. Pour approcher le fonctionnement d'un modèle piston-diffusionnel caractérisé par un nombre de PECLET, P_e, il est alors possible de jouer sur deux paramètres δ et N. La relation entre ces trois variables qui conduit à des modèles voisins est la suivante[47].

$$P_e \simeq \frac{N}{\delta + 0{,}5} \qquad (6)$$

L'étude de ce modèle d'écoulement pour traduire le fonctionnement d'une colonne d'extraction liquide-liquide a été menée par SLEICHER[48], MIYAUCHI[47] et HARTLAND et MECKLENBURGH[49]. Ayant choisi un nombre d'étages N, il est possible de traduire l'intensité du mélange longitudinal sur chaque phase en ajustant le coefficient δ correspondant. Par rapport au modèle continu (2), ce modèle à étages offre un paramètre supplémentaire.

Remarques sur les modèles

Cette rapide revue des différentes représentations du fonctionnement d'une colonne d'extraction liquide-liquide montre que les phénomènes susceptibles d'intervenir sont nombreux et de nature variée ; ils dépendent du type de colonne utilisée, de la nature des phases et aussi du régime d'opération. Cette variété justifie une diversité encore plus grande dans la nature des modèles utilisés ; en effet, il faut remarquer que jusqu'à présent l'effort a porté essentiellement sur une meilleure description de l'écoulement des phases, les problèmes liés au phénomène de transfert étant le plus souvent ignorés. Le développement de nouveaux modèles se heurte à deux types de difficultés qui sont liées d'une part à leur intégration et d'autre part à l'augmentation du nombre des phénomènes pris en compte. Les difficultés de calcul sont bien illustrées par l'article de MISEK et ROD[50] et sont progressivement résolues par une meilleure utilisation des techniques existantes de calcul numérique. Pour sa part l'augmentation du nombre des phénomènes pris en compte entraîne des problèmes liés au fait qu'ils sont souvent interactifs et qu'il est difficile de les étudier isolément. Il faut alors multiplier et perfectionner les techniques de mesure ainsi que les méthodes de traitement des résultats expérimentaux pour identifier les paramètres des modèles.

III - LE MATERIEL EXPERIMENTAL.-

Le mémoire de thèse de A. BORRELL comporte une description détaillée de la colonne, des conditions opératoires et des mesures effectuées. En conséquence, ce qui suit ne constitue qu'une description rapide destinée à donner au lecteur les indications essentielles.

La colonne

Elle comporte une section de mise en contact de 1 m de longueur et de 50 mm de diamètre. Dans cette partie, 40 couronnes circulaires de 35 mm de diamètre intérieur sont fixées sur les parois de la colonne, perpendiculairement à l'écoulement ; en réduisant la section de passage des fluides, elles jouent le rôle de chicanes. Centré à l'intérieur de chacun des compartiments délimités par les chicanes, se trouve un disque de 30 mm de diamètre et de 1 mm d'épaisseur. Tous ces disques sont entraînés par un arbre situé dans l'axe de la colonne.

Les produits utilisés

Le mélange à séparer est une solution aqueuse d'acide acétique ; il forme la phase continue qui est envoyée en tête de colonne. Le solvant est l'éther isopropylique qui constitue la phase dispersée ; il est envoyé en pied de colonne et la séparation se fait en tête par décantation.

Les résultats expérimentaux

Deux groupes de résultats expérimentaux ont été utilisés dans la présente étude.

Le premier groupe est constitué par des réponses de la colonne à une injection de traceur dans la phase continue. Un dispositif particulier permettait d'injecter en tête de colonne, juste au-dessous de l'interface de la zone de décantation, une petite quantité d'un traceur ; l'injection étant suffisamment brève pour être assimilée à une impulsion de DIRAC. Le traceur utilisé était une solution diluée d'acide chlorhydrique ; sa concentration était mesurée à 900 mm du point d'injection, par conductimétrie, à l'aide de deux électrodes en platine et d'un conductimètre.

Le deuxième groupe est constitué par des mesures de la concentration de chacune des phases en plusieurs points à l'intérieur de la colonne.

o

o o

P R E M I E R E P A R T I E

METHODES NUMERIQUES

— oOo —

La diversité qui existe dans les méthodes utilisées par les chercheurs pour exploiter leurs résultats expérimentaux est un phénomène étonnant : on constate que chaque discipline a tendance à développer ses propres méthodes sans trop se soucier de savoir comment des problèmes semblables sont résolus dans les autres disciplines. En général, le chercheur qui présente une nouvelle technique de mesure et la méthode de traitement associée, a de grandes chances de faire école, et de voir ses idées reprises et améliorées par ses successeurs. Le rôle de la méthode des moments dans l'analyse des phénomènes hydrodynamiques est caractéristique de cette tendance.

D'une manière générale, cette attitude des chercheurs se manifeste d'autant plus nettement que le phénomène physique étudié est plus complexe. En présence d'un phénomène stationnaire à paramètres localisés, et lorsque le nombre des variables est réduit, les relations qui existent entre elles peuvent se traduire de manière graphique ; ce n'est que lorsque le nombre des variables augmente que l'utilisation de méthodes numériques élaborées devient nécessaire pour le traitement mathématique. Les statistiques offrent alors un outil assez facile à utiliser pour aborder ce type de problèmes, et les différentes approches sont relativement uniformes. Lorsque le phénomène étudié est non stationnaire, ou encore à paramètres répartis, l'utilisation d'un modèle mathématique faisant intervenir des équations différentielles est le plus souvent nécessaire. L'analyse des résultats expérimentaux se complique alors de problèmes d'intégration du modèle. Un troisième degré de complexité est atteint avec les systèmes qui sont à la fois non-stationnaires et à paramètres répartis : leurs modèles font souvent intervenir des équations différentielles aux dérivées partielles qu'il faut intégrer. Bien souvent l'intérêt d'une méthode de traitement se détermine par les facilités qu'elle offre pour éviter tout problème mathématique délicat. En présence d'un système physique complexe, une telle exigence de simplicité présente le double inconvénient de limiter la quantité d'information qu'il est possible d'extraire d'un ensemble de résultats expérimentaux, et de restreindre le domaine des mesures possibles, celles-ci étant indissociables de leur traitement.

La colonne à disques rotatifs étant un système à paramètres répartis, et une partie de son étude ayant été effectuée en dynamique, il a semblé intéressant, dans cette première partie de l'exposé, de présenter en détail les différentes techniques mises en oeuvre dans le traitement des résultats expérimentaux.

o

o o

- C H A P I T R E II -

METHODE D'IDENTIFICATION

— o —

I - PRINCIPE DES METHODES UTILISEES.-

L'étude d'un phénomène physique pour lequel on dispose d'un modèle mathématique se ramène généralement à déterminer les valeurs de certains paramètres d'un modèle à partir de résultats expérimentaux. Deux approches différentes peuvent être adoptées pour résoudre ce type de problème.

La première approche, qui est connue sous le nom de méthode du modèle(1), consiste à simuler le phénomène physique à l'aide d'un modèle mathématique dans lequel certains paramètres sont indéterminés, et à comparer les résultats expérimentaux aux valeurs données par ce modèle pour différentes valeurs de ses paramètres libres. En modifiant systématiquement ceux-ci on cherche à obtenir le meilleur accord possible entre les deux ensembles de valeurs numériques. La qualité de cet accord est mesurée par un critère d'écart dont la forme est bien souvent choisie de manière empirique ; le critère le plus souvent employé étant le critère quadratique suivant :

$$C(\underline{a}) = \sum_{i=1}^{N} \alpha_i \left[x^i_{ex} - x^i_{th}(\underline{a}) \right]^2$$

dans lequel $\underline{a}$ représente le vecteur des paramètres libres, x^i_{ex} et $x^i_{th}(\underline{a})$ les valeurs expérimentales et celles données par le modèle, et les α_i des coefficients de pondération des écarts. Mathématiquement le problème de la détermination des paramètres consiste à trouver le vecteur $\underline{a}$ qui minimise le critère d'écart; un algorithme d'optimisation peut servir pour la recherche de ce minimum. L'inconvénient principal de cette approche est de nécessiter l'intégration du modèle mathématique et la mise en oeuvre d'une méthode d'optimisation, ce qui impose bien souvent d'utiliser un calculateur numérique ou analogique.

La deuxième approche du problème d'identification consiste à utiliser non pas le modèle lui-même, mais certaines de ses propriétés caractéristiques qui peuvent facilement être déterminées expérimentalement. Ainsi, par exemple l'identification de la constante de temps d'un système du premier ordre à partir de sa réponse à un échelon peut se faire en prenant l'intersection de l'asymptote de la réponse avec sa tangente à l'origine. L'avantage de ces méthodes réside en général dans leur simplicité de mise en oeuvre, le traitement mathématique ayant été effectué une fois pour toutes lors de l'établissement des propriétés utilisées. Dans bien des cas, leur inconvénient est de

n'exploiter qu'une partie de l'information disponible et de ne pas permettre une vérification de la validité du modèle. La méthode des moments, dont il sera question plus loin, est un autre exemple de ce deuxième type d'approche du problème d'identification.

Dans la présente étude, la méthode du modèle a été le plus souvent utilisée, la deuxième approche n'étant mise en oeuvre que pour déterminer des valeurs locales des paramètres dans l'étude des profils de concentration (chapitre VIII).

II - METHODES D'OPTIMISATION.-

Deux algorithmes d'optimisation ont été utilisés, celui de HOOKE et JEEVES, auquel quelques améliorations ont été apportées, puis celui de GAUSS-NEWTON qui s'est révélé être le plus intéressant.

II-1 - METHODE DE HOOKE ET JEEVES.-

Cet algorithme est présenté dans l'ouvrage cité en référence[2], le texte du programme correspondant écrit en langage FORTRAN et un organigramme figurent dans la référence[3]. Ce qui suit constitue simplement un rapide exposé de principe permettant de préciser les inconvénients de la méthode et les aménagements qui lui ont été apportés.

En partant d'une estimation initiale $\underline{a}_o$ des valeurs des paramètres de la fonction à minimiser, l'algorithme de HOOKE et JEEVES permet de déterminer une suite de valeurs $\underline{a}_1$, $\underline{a}_2$, ..., $\underline{a}_k$,... pour lesquelles la fonction décroît constamment. Cette détermination des différents points se déroule en deux phases qui sont reprises alternativement, l'une de recherche locale, et l'autre d'accélération de la progression. La recherche locale consiste à trouver un point $\underline{a}^*_k$, voisin de $\underline{a}_k$, où la fonction prend une valeur inférieure à celle qu'elle a en $\underline{a}_k$. Ce point est recherché parmi l'ensemble obtenu en ajoutant ou en retranchant successivement à chaque composante de $\underline{a}_k$ une quantité fixée Δa (cet incrément n'a en général pas la même valeur pour toutes les composantes du vecteur $\underline{a}_k$). Si la recherche locale conduit à un échec, elle est reprise avec des incréments Δa deux fois plus petits, et ceci

jusqu'à ce qu'elle conduise à un succès ou que le nombre de divisions des incréments ait atteint une valeur limite fixée à l'avance. Dans ce dernier cas la recherche est abandonnée et le point $\underline{a}_k$ est réputé être le minimum de la fonction. Lorsque la recherche locale conduit à un succès l'algorithme passe dans la phase d'accélération de la recherche. Dans celle-ci on calcule la valeur de la fonction en un point $\underline{a}_{k+1}$, symétrique de $\underline{a}_{k-1}$ par rapport à $\underline{a}^*_k$. Cette procédure permet de corriger l'ancienne direction de progression $(\underline{a}_{k-1}, \underline{a}_k)$ à l'aide de l'information fournie par la recherche locale, $(\underline{a}_k, \underline{a}^*_k)$; elle accélère la progression lorsque ces deux déplacements indiquent des directions favorables voisines. Une nouvelle phase de recherche locale est alors entreprise, autour du point $\underline{a}_{k+1}$ si l'accélération donne un résultat favorable, ou autour de a^*_k dans le cas contraire.

La rapidité de convergence de cette méthode est liée à la qualité de l'estimation initiale car sa progression reste lente malgré les possibilités d'accélération. Un autre inconvénient est lié à l'algorithme de recherche locale qui impose un choix de points très limité. Lorsque la fonction à minimiser présente une vallée étroite qui n'est pas orientée suivant l'un des axes, il faut réduire les incréments de manière importante : ceci peut conduire à bloquer la recherche et ralentit la vitesse de progression.

La modification apportée consiste à augmenter la souplesse de la recherche locale en réduisant indépendamment l'incrément sur chaque coordonnée jusqu'à ce qu'une diminution de la fonction ait été enregistrée, ou jusqu'à ce que le nombre limite de réductions ait été atteint. En contrepartie lorsque l'incrément utilisé sur une coordonnée donne des résultats satisfaisants pendant plusieurs recherches locales successives, sa valeur est doublée. La recherche n'est arrêtée que lorsque tous les incréments ont été réduits à leur valeur minimale.

Des comparaisons entre les deux versions de l'algorithme ont montré l'intérêt des modifications apportées : elles confèrent une plus grande souplesse pour suivre les vallées étroites et de plus grandes possibilités d'accélération ; ce qui se traduit par une plus grande rapidité et de meilleurs résultats. En tant que méthode d'optimisation, cette version adaptée de l'algorithme de HOOKE et JEEVES est très fiable et relativement rapide ; toutefois l'algorithme de GAUSS-NEWTON, mis en oeuvre par la suite, s'est avéré plus rapide et mieux adapté au problème d'identification.

II-2 - METHODE DE GAUSS-NEWTON.-

Cette méthode a été spécialement développée pour résoudre les problèmes d'identification paramétrique qui conduisent à minimiser un critère d'écart ayant la forme suivante

$$C(\underline{a}) = \sum_{i=1}^{N} (y_i - x(i, \underline{a}))^2 \qquad (1)$$

Les (y_i) sont un ensemble de valeurs expérimentales à partir desquelles on cherche à identifier les paramètres $\underline{a}$ du modèle $x(i, \underline{a})$ [1, 3, 4] A partir d'une estimation initiale des paramètres, $\underline{a}_o$, l'algorithme détermine une suite de valeurs $\underline{a}_1$, $\underline{a}_2$, ... $\underline{a}_k$ qui donnent, lorsque l'algorithme converge, des valeurs de plus en plus faibles du critère.

Le passage du point $\underline{a}_k$ au point $\underline{a}_{k+1}$ fait intervenir un développement au premier ordre du modèle autour du point $\underline{a}_k$, ce qui transforme le critère en une forme quadratique; puis intervient une détermination analytique du minimum de cette forme quadratique. Lorsque ce minimum se trouve dans le domaine où la forme quadratique constitue une bonne approximation de la fonction à minimiser, la valeur du critère au point $\underline{a}_{k+1}$ diminue et une nouvelle étape est entreprise. En pratique la méthode a tendance à diverger lorsque l'estimation initiale est trop éloignée du minimum, et lorsque la surface critère présente l'allure d'une "vallée" très étroite*. L'utilisation d'un algorithme de recherche monovariable, permettant, avant d'entreprendre une nouvelle phase, de déterminer le minimum du critère sur la droite joignant $\underline{a}_k$ au minimum de la forme quadratique associée, a été abandonnée : elle améliore la convergence de la méthode mais elle la ralentit également de manière importante.

Ces différentes transformations du critère se traduisent de la manière suivante :

- la linéarisation du modèle conduit à l'approximation

$$x(i, \underline{a}_k + \underline{\Delta a}) \simeq x(i, \underline{a}_k) + \text{grad}^T\, x(i, \underline{a}_k)\, \underline{\Delta a} \qquad (2)$$

---

*La stabilité de la méthode est améliorée en prenant un point $\underline{a}_{k+1}$ entre $\underline{a}_k$ et le minimum de la forme quadratique; $\underline{a}_{k+1} = m\, \underline{a}_{mini} + (1 - m)\, \underline{a}_k$; m compris entre 0 et 1.

dans laquelle $\text{grad}^T\, x\,(i, \underline{a}_k)$ représente le vecteur transposé des dérivées premières du modèle par rapport aux composantes de $\underline{a}$, calculées au point $\underline{a}_k$, et $\underline{\Delta a}$ le vecteur des variations des paramètres

- en posant $\varepsilon_i = y_i - x\,(i, \underline{a}_k)$, la forme quadratique associée au critère autour du point $\underline{a}_k$ a pour expression

$$C\,(\underline{a}_k + \underline{\Delta a}) \simeq \sum_{i=1}^{N} \left[\varepsilon_i - \text{grad}^T\, x\,(i, \underline{a}_k)\ \underline{\Delta a}\right]^2 \qquad (3)$$

Elle peut également se mettre sous la forme

$$C\,(\underline{a}_k + \underline{\Delta a}) \simeq C\,(\underline{a}_k) + \underline{b}^T\ \underline{\Delta a} + \underline{\Delta a}^T\ B\ \underline{\Delta a} \qquad (4)$$

dans laquelle $\underline{b}$ est un vecteur et B une matrice symétrique définie positive.

$$\underline{b} = -\,2 \sum_i \varepsilon_i\ \text{grad}\ x\,(i, \underline{a}_k) \qquad (5)$$

$$B = \sum_i \text{grad}\ x\,(i, \underline{a}_k)\ \text{grad}^T\ x\,(i, \underline{a}_k) \qquad (6)$$

- le minimum de la forme quadratique (4) est donné par la résolution du système linéaire

$$B\ \underline{\Delta a} = -\,\frac{1}{2}\,\underline{b} \qquad (7)$$

La matrice B étant définie positive[1] le point ainsi déterminé correspond obligatoirement à un minimum.

Lors de la programmation de cette méthode, les dérivées du modèle ont été approchées par des différences finies faisant intervenir deux points, et l'inversion de la matrice B a été réalisée à l'aide de l'algorithme du pivot maximum[5].

II-3 - ETUDE DE LA FORME DE LA SURFACE CRITERE AUTOUR DU MINIMUM.-

En raison des erreurs inévitables dans la détermination des valeurs expérimentales qui figurent dans le critère, l'opération d'identification des paramètres d'un modèle ne peut conduire qu'à des résultats approchés ; de plus, il est difficile de parler de valeur exacte des paramètres, car un modèle mathématique n'est jamais qu'une représentation approximative de la réalité physique. Dans ces conditions, il n'y a aucune raison de privilégier le point qui correspond au minimum du critère par rapport à l'ensemble de ses voisins qui donnent au critère des valeurs également très faibles : il y a, en fait, dans l'espace des paramètres, un domaine à l'intérieur duquel tous les points peuvent être utilisés dans le modèle pour traduire de manière très semblable les phénomènes expérimentaux pris en considération par le critère .

Mathématiquement ce domaine se définit par une relation telle que

$$\underline{a} \in \mathcal{D} \iff C(\underline{a}) \leqslant C_{mini}(1 + \varepsilon) \qquad (8)$$

Plus $\mathcal{D}$ est petit et meilleure est la précision avec laquelle les paramètres sont déterminés. La forme du domaine $\mathcal{D}$ dépend à la fois du modèle mathématique et du choix des points expérimentaux. Son étude renseigne sur la qualité des informations fournies par un ensemble de résultate expérimentaux pour la détermination des paramètres d'un modèle. En utilisant un développement du critère, limité au deuxième ordre, les isocritères ont la forme d'ellipsoïdes concentriques facilement caractérisables par quelques paramètres tels que la longueur et l'orientation de leurs axes. Les surfaces isocritères sont souvent de forme très allongée : il existe alors dans l'espace des paramètres toute une ligne de points utilisables par le modèle pour traduire de manières équivalentes les résultats expérimentaux ; ceci correspond à une insuffisance de l'information pour déterminer en même temps tous les paramètres. Dans une telle situation la méthode de GAUSS-NEWTON a tendance à diverger, ce qui peut être considéré comme un aspect positif, car elle indique ainsi un défaut d'information, alors qu'une méthode plus stable donnerait un résultat sans éveiller aucun soupçon sur sa validité.

Un autre avantage de la méthode de GAUSS-NEWTON est de donner, en même temps que le minimum, la forme quadratique associée à la surface critère autour de ce point.

$$C\,(\underline{a}_{opt} + \underline{\Delta a}) = C\,(\underline{a}_{opt}) + \underline{\Delta a}^T\, B\, \underline{\Delta a} \qquad (9)$$

Le domaine $\mathcal{D}$ a alors pour frontière :

$$\underline{\Delta a}^T\, B\, \underline{\Delta a} = \varepsilon\, C\,(\underline{a}_{opt}) \qquad (10)$$

Pour le caractériser de manière simple, deux informations ont été utilisées : d'une part le rapport du plus petit au plus grand diamètre qui donne une idée de l'aplatissement de l'ellipsoïde, et d'autre part la position de l'extrémité du grand diamètre de l'ellipsoïse défini par la relation (10) en donnant à ε la valeur arbitraire 0,10. Ce point, qui est le plus éloigné du minimum dans le domaine $\mathcal{D}$, permet d'en apprécier l'étendue et, par conséquent, renseigne sur la précision de la détermination des paramètres du modèle. La méthode de calcul utilisée pour obtenir ces deux informations est présentée dans la référence[1]. Il faut noter que la seconde n'a de sens que par rapport à la notion de distance géométrique dans l'espace des paramètres ; cette difficulté a été résolue en effectuant un changement d'échelle qui ramène à l'unité la valeur de chaque paramètre au minimum.

A partir d'une étude statistique des erreurs expérimentales, il est possible, moyennant certaines hypothèses, de définir un critère d'écart mieux fondé que celui utilisé ici, et de déterminer l'influence des erreurs sur la détermination des paramètres[6]. Cette démarche conduit à trouver des ellipsoïdes de confiance analogues à ceux dont il a été question ici. Elle n'a pas été utilisée dans le cas présent car la vérification des hypothèses nécessaires demande une étude statistique des erreurs expérimentales qui n'a pas semblé justifiée.

III - METHODE DES MOMENTS.-

C'est une méthode d'identification des paramètres d'un modèle dynamique à partir d'une réponse impulsionnelle expérimentale. Elle a été proposée par LEVENSPIEL et SMITH[7] pour déterminer la dispersion axiale dans un réacteur, à l'aide du modèle piston diffusionnel ouvert-ouvert. Les données expérimentales nécessaires sont obtenues en injectant dans un écoulement une impulsion d'un traceur dont la concentration est mesurée en un point situé en aval du lieu d'injection. Par la suite, VAN DER LAAN[8] a développé l'étude de LEVENSPIEL en considérant d'autres conditions aux limites.

III-1 - PRINCIPE DE LA METHODE.-

Elle consiste à se donner a priori un modèle mathématique comportant n paramètres à identifier, et à calculer les expressions analytiques des n premiers moments de sa réponse impulsionnelle : celles-ci forment un ensemble de n relations comportant les n paramètres. Ces expressions ont été calculées pour de nombreux modèles et figurent dans la littérature. Il suffit alors de mesurer les n premiers moments de la réponse expérimentale, $s_{ex}(t)$, en calculant les expressions

$$\mu_k = \int_0^{+\infty} t^k \; s_{ex}(t) \, dt$$

et de résoudre un système de n équations à n inconnues. Cette méthode utilise le fait que les expressions des moments forment un ensemble de relations indépendantes ; d'autres caractéristiques de la réponse impulsionnelle pourraient être utilisées.

La méthode des moments a été étendue au cas où le signal d'excitation n'est pas une impulsion de DIRAC, mais un signal de forme quelconque qui est mesuré expérimentalement[9, 10].

III-2 - CRITIQUE DE LA METHODE.-

En contrepartie de sa simplicité qui est liée au fait que les expressions analytiques des moments de nombreux modèles figurent dans la littérature[11], la méthode des moments présente trois inconvénients :

1 - Les moments déterminés expérimentalement sont sensibles au bruit dont les résultats sont entachés ; cette sensibilité au bruit augmente avec l'ordre du moment. Il existe plusieurs méthodes pour pallier cet inconvénient, soit l'utilisation des moments pondérés[12], soit le remplacement de la fin des réponses expérimentales par une extrapolation analytique[13, 14].

2 - Les moments ne traduisent qu'une partie de l'information contenue dans une réponse expérimentale. Cette concentration d'information conduit à la détermination d'un ensemble de valeurs des paramètres à identifier, mais elle fait perdre tous les renseignements relatifs à la précision de cette détermination.

3 - Enfin, la méthode des moments suppose la validité du modèle mathématique sans qu'il soit possible de vérifier cette hypothèse. La vérification par l'utilisation d'un moment supplémentaire est en général impossible en raison de l'imprécision de sa détermination.

Malgré ces inconvénients, la méthode des moments demeure intéressante lorsqu'on désire obtenir rapidement et simplement des résultats.

o

o o

- CHAPITRE III -

TRANSFORMATION DISCRETE DE FOURIER

— 0 —

Des études du comportement dynamique de la colonne, exposées dans le chapitre V, ont conduit à calculer numériquement la transformée de FOURIER de signaux expérimentaux échantillonnés. Ce calcul a été fait en utilisant l'algorithme FFT (Fast Fourier Transform) qui a donné de très bons résultats mais nécessite certaines précautions lors de son utilisation.

I - L'ALGORITHME FFT.-

Présenté pour la première fois dans un article de J.W. COOLEY et J.W. TUCKEY[15], cet algorithme et ses applications ont fait l'objet de nombreux travaux : deux numéros de la revue I.E.E.E. Transaction on Audio and Electroacoustics[16,17] lui ont été consacrés, ainsi qu'une publication de la compagnie I.B.M.[18]. Il semble que ce soit P.W. MURRILL [19] qui ait le premier mentionné son existence dans une revue de génie chimique.

Voici un bref exposé des caractéristiques essentielles de cette méthode.

A partir d'une séquence de N valeurs (x_i) pouvant provenir de l'échantillonnage d'un signal $x(t)$ avec un pas Δt, l'algorithme permet de calculer très rapidement une deuxième séquence de N valeurs complexes (X^*_n) qui constitue la Transformée Discrète de FOURIER (TDF) de la première. Bien que dans le cas général les séquences (x_i) et (X^*_n) puissent être complexes, on considèrera ici que (x_i) est réelle et (X^*_n) complexe.

La transformation directe est définie par la relation

$$X^*_n = \sum_{i=0}^{N-1} x_i \exp\left(-2\pi j \frac{in}{N}\right) ; n = 0 \text{ à } N-1 \qquad (11)$$

la transformation inverse étant

$$x_i = \frac{1}{N} \sum_{n=0}^{N-1} X^*_n \exp\left(2\pi j \frac{in}{N}\right) ; i = 0 \text{ à } N-1 \qquad (12)$$

II - RELATION AVEC LA TRANSFORMATION DE FOURIER.-

Sous certaines conditions, la séquence (X^*_n) constitue un échantillonnage de la transformée de FOURIER, $X(f)$, du signal continu $x(t)$. En effet on montre que les deux séquences suivantes se correspondent dans la TDF :

$$x^*_i = \sum_{l=-\infty}^{+\infty} x\,(i\ \Delta T + l\ N\Delta T) \longleftrightarrow X^*_n = \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \frac{1}{\Delta T}\, X\left(\frac{n}{N\,\Delta T} + \frac{k}{\Delta T}\right) \qquad (13)$$

Si le signal $x(t)$ n'est non nul que sur un intervalle de temps fini, la séquence (x^*_i) peut aisément être construite. Si de plus $x(t)$ ne contient aucune énergie au-delà de la fréquence $f_{max} = 1/(2\,\Delta T)$, sa transformée de FOURIER est nulle en dehors de l'intervalle $]-f_{max}, + f_{max}[$. Il n'y a alors qu'un seul terme non nul dans la somme

$$X^*_n = \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \frac{1}{\Delta T}\, X\left(\frac{n}{N\,\Delta T} + \frac{k}{\Delta T}\right) \qquad (14)$$

en supposant N pair la séquence X^*_n se ramène à

$$\frac{1}{\Delta T}\, X\left(\frac{n}{N\,\Delta T}\right),\ n=0 \text{ à } \frac{N}{2}-1\ ;\ 0\ ;\ \frac{1}{\Delta T}\, X\left(\frac{n-N}{N\,\Delta T}\right),\ n=\frac{N}{2}+1 \text{ à } N-1 \qquad (15)$$

L'algorithme FFT permet dans ce cas de calculer des valeurs de $X(f)$ échantillonnées avec un pas $\Delta f = 1/(N\,\Delta T)$. Le signal $x(t)$ étant réel, sa transformée de FOURIER est telle que $X(-f)$ est l'expression complexe conjuguée de $X(f)$, et la deuxième moitié de la séquence (X^*_n) se déduit de la première.

Lorsque le signal $x(t)$ contient de l'énergie au-delà de la fréquence $1/(2\,\Delta T)$, plusieurs termes de la somme (14) sont non nuls, et X^*_n représente un échantillonnage de la transformée de FOURIER repliée sur l'intervalle $[-1/(2\,\Delta T), +1/(2\,\Delta T)]$. Pour éviter ce phénomène il faut soit

diminuer le pas d'échantillonnage ΔT, soit, lorsque les composantes à fréquence élevée sont sans intérêt, faire passer le signal dans un filtre passe-bas, avant échantillonnage. Un exemple de filtrage d'un signal contenant de l'énergie à toutes les fréquences figure dans le paragraphe suivant.

Le problème du repliement se pose de manière analogue lors de l'utilisation de la TDF inverse. Lorsque la transformée de FOURIER $X(f)$ n'est non nulle que sur un intervalle de fréquence borné, la séquence (X^*_n) de la relation (13) est facile à construire. Si de plus la fonction $x(t)$ est nulle en dehors de l'intervalle $[0, N\ \Delta T[$, la somme

$$x^*_i = \sum_{l=-\infty}^{+\infty} x\,(i\ \Delta T + l\ N\ \Delta T) \tag{15}$$

ne contient qu'un seul terme non nul.

$$x^*_i = x\,(i\ \Delta T) \quad i = 0 \text{ à } N-1 \tag{16}$$

et l'algorithme FFT permet de retrouver l'original de $X(f)$. Dans le cas où $x(t)$ n'est pas nul en dehors de l'intervalle $[0, N\ \Delta T[$, x^*_i représente un échantillonnage de la fonction $x(t)$ repliée sur l'intervalle $[0, N\ \Delta T]$.

Ce phénomène de repliement est le seul point délicat dans l'utilisation de FFT. Il correspond au fait qu'il n'est pas possible de calculer la transformée d'une fonction si celle-ci est incomplètement connue ; en conséquence il faut conduire l'échantillonnage de manière à ne pas perdre d'information.

III - EXEMPLE DE REPLIEMENT DU SPECTRE.-

La réponse d'un filtre linéaire du deuxième ordre à un signal d'entrée en forme de double créneau a été calculée numériquement en 512 points espacés de 0,5 seconde. A partir de la séquence $y(i\ \Delta T)$ ainsi obtenue, l'algorithme FFT a été utilisé pour calculer la transformée discrète de FOURIER, $Y^*(k\ \Delta f)$, du signal de sortie. Ces valeurs ont ensuite été comparées à celles fournies par $Y(f)$, expression analytique de la transformée de FOURIER du signal $y(t)$. Le signal d'entrée utilisé avait pour expression

$$\begin{aligned} x(t) &= 1 \quad \text{pour } t \in [0,5] \quad \text{et} \quad [10,15] \\ x(t) &= 0 \quad \text{ailleurs} \end{aligned} \tag{17}$$

et le filtre linéaire avait comme équation

$$\frac{1}{4\pi^2 f_n^2} \frac{d^2y}{dt^2} + \frac{1}{2\pi f_n} \frac{dy}{dt} + y = x(t) \tag{18}$$

Plusieurs essais ont été réalisés avec des filtres ayant des fréquences naturelles, f_n, de plus en plus faibles. Dans les premiers essais, le signal d'entrée, qui contient de l'énergie à toutes les fréquences, traverse le filtre en conservant beaucoup d'énergie au-delà de la fréquence limite $f = 1/(2\ \Delta T) = 1$ Hz, et la comparaison entre $Y^*(f)$ et $Y(f)$ fait apparaître des écarts importants. Au fur et à mesure que la fréquence f_n est abaissée, le contenu en fréquence de $y(t)$ au -delà de 1 Hz diminue, et les écarts disparaissent. Dans le tableau 1 on trouve le module de la différence $Y(f) - Y^*(f)$ aux trois fréquences où il est le plus grand, pour plusieurs valeurs de la fréquence naturelle du filtre. Il est à noter que ce terme tient compte à la fois des différences sur le module et sur la phase des deux expressions. Si on rapporte les résultats obtenus à la valeur maximum de $Y(f)$ qui est de 10, on constate que le filtre $f_n = 0,1$ Hz produit des écarts inférieurs à 1 o/oo (avec ce filtre, l'atténuation à 1 Hz est de 40 dB). En regardant les résultats obtenus avec les filtres les plus efficaces on remarque que FFT donne des résultats très précis ; ceci est à rapprocher des conclusions, d'une étude[20] montrant la faible influence des erreurs d'arrondi dans le calcul de FFT.

La précision des résultats obtenus avec FFT n'a pas été comparée avec celle que l'on peut obtenir en utilisant d'autres algorithmes fondés sur la méthode de FILON. Plusieurs auteurs[21, 22, 23] signalent toutefois que les résultats donnés par ces algorithmes deviennent imprécis au-delà de la première fréquence pour laquelle la transformée du signal s'annule. Avec le signal, x(t), utilisé ici, cette fréquence est de 0,05 Hz ; le fait que FFT permette de calculer avec précision jusqu'à 1 Hz est donc une indication en faveur de cette méthode.

IV - THEOREME DE PARSEVAL ET SON APPLICATION A L'IDENTIFICATION.-

Il existe pour la transformée discrète de FOURIER un théorème analogue au théorème de PARSEVAL, qui s'exprime par la relation

$$\sum_{i=0}^{N-1} x^2_i = \frac{1}{N} \sum_{n=0}^{N-1} \left| X^*_n \right|^2 \qquad (19)$$

Ce théorème permet de simplifier de manière importante le problème de l'étude en dynamique du comportement d'un système physique linéaire. La manière classique de poser le problème est la suivante : il s'agit d'identifier les paramètres $\underline{a}$ d'un modèle mathématique, connaissant la réponse s(t) d'un système physique à une entrée e(t). La sortie du système physique est connue de manière échantillonnée, et le critère à minimiser a pour expression

$$C(\underline{a}) = \sum_{i=0}^{N-1} \left[s(i\,\Delta T) - s_{th}(i\,\Delta T, \underline{a}, e(t)) \right]^2 \qquad (20)$$

$s_{th}(i\,\Delta T, \underline{a}, e(t))$ étant la réponse du modèle à la même perturbation e(t). Dans le cas général, le signal d'entrée est, lui aussi, connu sous forme d'une suite de valeurs échantillonnées.

La réponse d'un système linéaire à une entrée quelconque, e(t), est donnée par l'intégrale de convolution

$$s_{th}(t, \underline{a}, e(t)) = \int_0^{+\infty} h(\tau, \underline{a})\, e(t-\tau)\, d\tau \qquad (21)$$

dans laquelle $h(\tau, \underline{a})$ représente la réponse impulsionnelle du modèle. Cette expression n'est toutefois pas pratique pour déterminer la réponse du modèle, car il faut calculer l'intégrale pour chacune des valeurs échantillonnées de la sortie ; la meilleure façon d'effectuer ce calcul consiste à passer par les transformées de FOURIER en utilisant l'algorithme FFT.
La transformée de la sortie du modèle a pour expression :

$$S_{th}(f, \underline{a}) = H(f, \underline{a})\ E(f) \tag{22}$$

dans laquelle $H(f, \underline{a})$ est la fonction de transfert du modèle et $E(f)$ la transformée du signal d'entrée.

L'algorithme FFT permet de déterminer la sortie du modèle à partir de sa transformée discrète qui a pour expression

$$S^*_{th}(i\ \Delta f) = \frac{1}{\Delta T} \sum_{k=-\infty}^{+\infty} S_{th}\left(i\ \Delta f + \frac{k}{\Delta T}\right) \tag{23}$$

Soit

$$S^*_{th}(i\ \Delta f) = \frac{1}{\Delta T} \sum_{k=-\infty}^{+\infty} H\left(i\ \Delta f + \frac{k}{\Delta T}, \underline{a}\right) E\left(i\ \Delta f + \frac{k}{\Delta T}\right) \tag{24}$$

Dans cette relation la fonction de transfert est connue à toutes les fréquences, par contre seule la transformée discrète de l'entrée est connue

$$E^*(i\ \Delta f) = \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \frac{1}{\Delta T} E\left(i\ \Delta f + \frac{k}{\Delta T}\right) \tag{25}$$

S^*_{th} ne peut donc être calculée que si l'on peut remonter de E^* à E, c'est-à-dire si l'échantillonnage du signal d'entrée n'introduit pas de repliement de son spectre. On a alors

$$\begin{aligned} E(i\ \Delta f) &= \Delta T \cdot E^*(i\ \Delta f) \quad \text{pour } f \in \left[-\frac{1}{2\ \Delta T} + \frac{1}{2\ \Delta T}\right] \\ E(i\ \Delta f) &= 0 \qquad\qquad \text{ailleurs} \end{aligned} \tag{26}$$

et

$$S^*_{th}(i\ \Delta f) = H(i\ \Delta f,\ \underline{a})\ E^*(i\ \Delta f) \tag{27}$$

La transformée discrète de l'entrée ayant été déterminée une fois pour toutes, chaque calcul de la sortie du modèle correspondant à une nouvelle valeur du vecteur $\underline{a}$ se ramène à déterminer les valeurs de $S^*_{th}(i\ \Delta f)$ à l'aide de la relation (27) et à inverser cette transformée. Le passage dans le domaine fréquentiel est particulièrement intéressant pour traiter les problèmes d'identification des systèmes linéaires à paramètres distribués, car pour ces derniers, le calcul de l'intégrale de convolution se complique du fait que l'expression analytique de leur réponse impulsionnelle n'est pas toujours connue, et qu'elle est, de toutes façons, beaucoup plus compliquée que celle de leur fonction de transfert.

Le théorème de PARSEVAL permet de simplifier encore le calcul du critère en supprimant la nécessité de faire intervenir FFT pour chaque nouvelle valeur du vecteur $\underline{a}$. En effet le critère (20) s'exprime dans le domaine fréquentiel sous la forme :

$$C(\underline{a}) = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} \left[S^*(i\ \Delta f) - S^*_{th}(i\ \Delta f, \underline{a}) \right]^2 \tag{28}$$

$S^*(i\ \Delta f)$ étant la transformée discrète de la sortie expérimentale, qui n'a besoin d'être calculée qu'une seule fois. Le critère (28) s'écrit aussi sous la forme

$$C(\underline{a}) = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} \left| \frac{S^*(i\ \Delta f)}{E^*(i\ \Delta f)} - H(i\ \Delta f,\ \underline{a}) \right|^2 \left| E\ (i\ \Delta f) \right|^2 \tag{29}$$

dans laquelle le premier terme représente la fonction de transfert déterminée expérimentalement, $H(i\ \Delta f,\ \underline{a})$ étant la fonction de transfert théorique, et les écarts à chaque fréquence sont pondérés par l'énergie contenue dans le signal d'entrée, $|E\ (i\ \Delta f)|^2$. La minimisation à l'aide de la méthode de GAUSS-NEWTON, de ce critère faisant intervenir des grandeurs complexes, est présentée en annexe.

Cas particulier

Un cas particulier est celui dans lequel le signal d'entrée n'est pas mesuré, mais est supposé avoir une forme déterminée. Sa transformée de FOURIER, $E(i\ \Delta f)$, est alors connue à toutes les fréquences, et le calcul de $S^*_{th}(i\ \Delta f)$, à partir de la relation (24), ne soulève aucune difficulté. Le critère à minimiser prend alors la forme

$$C(\underline{a}) = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} \left| S^*(i\ \Delta f) - S^*_{th}(i\ \Delta f,\ \underline{a}) \right|^2 \qquad (30)$$

sans qu'il y ait aucune contrainte sur le pas d'échantillonnage utilisé.

V - PROGRAMMATION DE L'ALGORITHME.-

Un sous-programme effectuant la transformation de FOURIER suivant l'algorithme FFT a été écrit en collaboration avec M.J. LÁZAR[24], lors de son séjour à l'Institut du Génie Chimique. Son mémoire contient une étude de l'algorithme et le texte du sous-programme.

o

o o

- CHAPITRE IV -

INTEGRATION NUMERIQUE DU MODELE DE MIYAUCHI

— O —

Avec un ternaire pour lequel la relatinn d'équilibre est linéaire, le modèle de MIYAUCHI se présente sous la forme de deux équations différentielles linéaires du deuxième ordre. Ce système possède une solution analytique pour laquelle il faut déterminer les racines d'une équation caractéristique du troisième degré (du deuxième degré seulement si le facteur d'extraction est égal à l'unité) et résoudre un système linéaire de trois équations. Ces différentes opérations s'effectuent sans difficulté à l'aide d'un calculateur numérique.

Lorsque la relation d'équilibre n'est pas linéaire, il n'existe plus de solution analytique, et des difficultés apparaissent, liées au fait que les conditions aux limites accompagnant les équations interviennent simultanément aux deux extrémités du domaine d'intégration. Une première approche utilisée par ROD[25] dans une solution graphique, puis par HARTLAND et MECKLENBURGH[26] dans une solution numérique, consiste à choisir une "méthode de tir" : les conditions manquantes sur une frontière sont estimées, les équations sont intégrées à l'aide d'une méthode à conditions initiales de type RUNGE-KUTTA, puis on vérifie que les conditions aux limites connues sur la frontière d'arrivée sont satisfaites. Une itération est alors utilisée pour ajuster les estimations initiales, jusqu'à la convergence de la méthode. HARTLAND et MECKLENBURGH ont montré que, dans certains cas, cette convergence est très difficile à obtenir, les calculs étant très sensibles aux erreurs commises sur les estimations initiales.

Une deuxième approche classique dans cette situation[5] fait disparaître les difficultés liées aux conditions aux limites ; elle consiste à remplacer le problème d'intégration par un problème de recherche des racines d'un système d'équations. Cette méthode a été utilisée avec succès dans la présente étude pour intégrer un modèle présenté en annexe dans lequel la relation d'équilibre n'est pas linéaire, le produit $K_x a$ et la retenue de phase dispersée sont des fonctions de l'abscisse :

$$\frac{1}{P_x(z)}\left[\frac{d^2x}{dz^2} - \frac{1}{1-\varphi(z)}\frac{d\varphi}{dz}\frac{dx}{dz}\right] - \frac{dx}{dz} + N_x(z)\,(x^* - x) = 0$$

$$\frac{1}{P_y(z)}\left[\frac{d^2y}{dz^2} + \frac{1}{\varphi(z)}\frac{d\varphi}{dz}\frac{dy}{dz}\right] + \frac{dy}{dz} - \frac{Dx}{Dy}N_x(z)\,(x^* - x) = 0 \qquad (31)$$

avec les conditions aux limites

$$x_e = x(0) - \frac{1}{P_x(0)}\frac{dx}{dz}(0) \qquad \frac{dx}{dz}(1) = 0$$

$$y_e = y(1) + \frac{1}{P_y(1)}\frac{dy}{dz}(1) \qquad \frac{dy}{dz}(0) = 0$$

I - DISCRETISATION DES EQUATIONS.-

Cette opération permet de remplacer les équations différentielles par des équations ordinaires. Pour cela les expressions des dérivées sont remplacées par les différences finies suivantes

$$\frac{d^2x}{dz^2} \simeq \frac{x_{i+1} - 2x_i + x_{i-1}}{\Delta z^2} \qquad \frac{dx}{dz} \simeq \frac{x_{i+1} - x_{i-1}}{2\Delta z}$$

$$\frac{d^2y}{dz^2} \simeq \frac{y_{i+1} - 2y_i + y_{i-1}}{\Delta z^2} \qquad \frac{dy}{dz} \simeq \frac{y_{i+1} - y_{i-1}}{2\Delta z} \qquad (32)$$

les x_i et y_i sont les concentrations en N+1 points d'abscisse $z = i\,\Delta z$ ($i = 0$ à N et $\Delta z = 1/N$). Les équations du système (31) deviennent alors :

$$\alpha_i\, x_{i-1} - \frac{2}{P_{xi}\,\Delta z}\, x_i + \beta_i\, x_{i+1} = N_{xi}\,\Delta z\,(x_i - x^*_i)$$

$$\gamma_i\, y_{i-1} - \frac{2}{P_{yi}\,\Delta z}\, y_i + \delta_i\, y_{i+1} = \frac{Dx}{Dy}N_{xi}\,\Delta z\,(x_i^* - x_i) \qquad (33)$$

avec :

$$\alpha_i = \left[\frac{1}{P_x \, \Delta z} + \frac{1}{2} \left(1 + \frac{1}{P_x \, (1 - \varphi)} \frac{d\varphi}{dz}\right) \right]_{z = i \, \Delta z}$$

$$\beta_i = \left[\frac{1}{P_x \, \Delta z} - \frac{1}{2} \left(1 + \frac{1}{P_x \, (1 - \varphi)} \frac{d\varphi}{dz}\right) \right]_{z = i \, \Delta z}$$

$$\gamma_i = \left[\frac{1}{P_y \, \Delta z} - \frac{1}{2} \left(1 + \frac{1}{P_y \, \varphi} \frac{d\varphi}{dz}\right) \right]_{z = i \, \Delta z}$$

$$\delta_i = \left[\frac{1}{P_y \, \Delta z} + \frac{1}{2} \left(1 + \frac{1}{P_y \, \varphi} \frac{d\varphi}{dz}\right) \right]_{z = i \, \Delta z}$$

Pour chacun des points i, de i = 1 à i = N-1, il est possible d'écrire deux relations semblables aux équations (33). On dispose donc de 2N - 2 relations pour déterminer les 2N + 2 valeurs des x_i et y_i. Les quatre relations manquantes sont fournies par les conditions aux limites exprimées sous forme discrète. Pour conserver la même précision que celle des relations (32), des différences finies faisant intervenir trois points sont utilisées :

$$\frac{dx}{dz}(0) \simeq \frac{-3\,x_0 + 4\,x_1 - x_2}{2\,\Delta z} \qquad \frac{dy}{dz}(0) \simeq \frac{-3y_0 + 4\,y_1 - y_2}{2\,\Delta z}$$

$$\frac{dx}{dz}(1) \simeq \frac{x_{N-2} - 4x_{N-1} + 3x_N}{2\,\Delta z} \qquad \frac{dy}{dz}(1) \simeq \frac{y_{N-2} - 4y_{N-1} + 3y_N}{2\,\Delta z} \tag{34}$$

et les conditions aux limites deviennent :

$$\left[1 + \frac{3}{2\,\Delta z\,P_{xo}}\right] x_o - \frac{2}{\Delta z\,P_{xo}}\,x_1 + \frac{1}{2\,\Delta z\,P_{xo}}\,x_2 = x_e$$

$$x_{N-2} - 4\,x_{N-1} + 3\,x_N = 0$$

$$3\,y_o - 4\,y_1 + y_2 = 0 \qquad (35)$$

$$\frac{1}{2\,\Delta z\,P_{yN}}\,y_{N-2} - \frac{2}{\Delta z\,P_{yN}}\,y_{N-1} + \left[1 + \frac{3}{2\,\Delta z\,P_{yN}}\right] y_N = y_e$$

L'ensemble des équations (33) et (35) permet de déterminer les $2N+2$ valeurs de x_i et y_i. Il est pratique d'écrire le système résultant sous forme vectorielle :

$$A_x\,X = B_x\,(X,\,Y)$$

$$A_y\,Y = B_y\,(X,\,Y) \qquad (36)$$

X et Y étant les vecteurs des inconnues, B_x et B_y des vecteurs composés des deuxièmes membres des équations, donc fonctions de X et Y, et A_x et A_y deux matrices carrées de dimension $N + 1$, ayant pour éléments les coefficients des x_i et des y_i dans les équations.

II - RESOLUTION DU SYSTEME D'EQUATIONS.-

Le système d'équations (36) est résolu par itération : à partir d'une estimation initiale, X_o et Y_o, de nouvelles valeurs sont obtenues par inversion des matrices A_x et A_y

$$X^*_1 = A_x^{-1}\,B_x\,(X_o,\,Y_o)$$

$$Y^*_1 = A_y^{-1}\,B_y\,(X_o,\,Y_o) \qquad (37)$$

Pour rendre l'itération convergente, il faut introduire une sous-relaxation, c'est-à-dire ne pas commencer l'étape suivante avec X^*_1 et Y^*_1,

mais avec une combinaison de ces vecteurs avec X_o et Y_o

$$X_1 = \omega X^*_1 + (1 - \omega) X_o$$
$$Y_1 = \omega Y^*_1 + (1 - \omega) Y_o \qquad (38)$$

Pour des facteurs de relaxation, ω , pris entre 0 et une valeur ω_{max}, l'itération converge; entre 0 et ω_{max} il existe une valeur optimale de ω qui donne la convergence la plus rapide. Ces deux valeurs, ω_{max} et ω_{opt}, dépendent des paramètres du problème ; elles sont notamment très sensibles au nombre d'unités de transfert, ω_{max} décroissant quand celui-ci augmente. Dans tous les calculs effectués, la convergence a été obtenue avec un facteur de relaxation compris entre 0,10 et 0,50.

L'arrêt de l'itération est décidé lorsque la variation des concentrations de sortie, x_N et y_o, entre les étapes k et k + 1, est inférieure à une valeur donnée. Ces deux variables étant celles qui convergent le plus lentement, ce test simple s'avère très efficace. Une variation relative entre deux étapes de 10^{-6} a été utilisée.

Enfin, pour résoudre le système d'équation (36), il est tiré parti du fait que les matrices B_x et B_y sont pratiquement tri-diagonales. Une procédure de substitution permet d'éliminer les termes en x_2, x_{N-2}, y_2 et y_{N-2} des équations (35), et de rendre ces matrices tri-diagonales. La résolution des équations (36) se fait alors simplement à l'aide d'un algorithme de substitution classique.

III - PRECISION DE LA METHODE.-

La méthode d'intégration numérique a été utilisée pour traiter plusieurs problèmes linéaires, et les résultats ont été comparés à ceux donnés par la solution analytique correspondante. Cette comparaison a montré que l'erreur est maximale à la sortie de chaque phase ; elle augmente avec la valeur des nombres de PECLET, et décroît quand le nombre d'intervalles de discrétisation augmente. En prenant 100 intervalles, l'erreur maximale est toujours restée inférieure à 10^{-3} en valeur relative : c'est cette discrétisation qui a été utilisée au cours de tous les calculs.

Cette intégration numérique a également été utilisée pour résoudre un problème non linéaire pour lequel HARTLAND et MECKLENBURGH[26] donnent une solution ($P_X = P_Y = 4,0$; $N_x = 5,0$; $F = 1$; $x^* = \sqrt{y}$). La comparaison des résultats, présentés dans le tableau 2 , montre un léger écart qui semble pouvoir être attribué à l'imprécision de la méthode de tir utilisée par les deux auteurs. Une identification des paramètres du modèle, menée à partir de leurs profils de concentration, a permis de les retrouver très précisément pour les valeurs suivantes : $P_x = 4,00$; $P_y = 4,13$; $N_x = 5,05$.

o

o o

D E U X I E M E P A R T I E

ETUDE A L'AIDE DE TRACEURS

—— oOo ——

- CHAPITRE V -

MODELES MATHEMATIQUES

— o —

Les modèles qui rendent compte de la distribution des temps de séjour des molécules d'un fluide traversant un appareil sont nombreux. Du point de vue de leur forme il est possible de distinguer les modèles discontinus, à cellules de mélange, des modèles continus du type piston diffusionnel. Du point de vue des résultats cette classification perd sa signification quand le nombre des cellules est élevé. D'autre part lorsque le modèle continu est intégré numériquement, il est nécessaire de le discrétiser : le modèle à cellules apparaît alors comme le résultat d'une discrétisation particulière, à laquelle il est possible d'attacher une signification physique. Plusieurs modèles ont été utilisés pour essayer de traduire le comportement de la phase continue de la colonne d'extraction en réponse à une injection de traceur ; ils ont comme caractéristique commune de ne comporter qu'une seule variable spatiale : l'abscisse sur l'axe de l'écoulement.

I - MODELES CONTINUS ET MODELES DISCRETS.-

Le modèle piston diffusionnel

Il s'exprime classiquement sous la forme

$$\frac{1}{P_e} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{\partial C}{\partial z} = \tau \frac{\partial C}{\partial t} \qquad (1)$$

avec des conditions aux limites qui dépendent de la configuration géométrique de l'appareil au voisinage des frontières de la zone dans laquelle l'écoulement est étudié.

Le modèle ouvert-ouvert a comme conditions aux limites

$$\frac{\partial C}{\partial z}(z, t) \longrightarrow 0 \text{ quand } z \longrightarrow \pm \infty \qquad (2)$$

et la transformée de LAPLACE de sa réponse à l'injection d'une impulsion de traceur est donnée[23] par

$$\mathcal{L}\left[C\ (1,\ t)\right] = \frac{\exp\left[\frac{P_e}{2}\left(1 - \sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}\right)\right]}{\sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}} \tag{3}$$

L'expression (3) n'est pas une fonction de transfert car le signal d'entrée C (0, t) n'est pas une impulsion de DIRAC : il a comme transformée

$$\mathcal{L}\left[C\ (0,\ t)\right] = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}} \tag{4}$$

Les relations (3) et (4) permettent d'exprimer la fonction de transfert du modèle piston diffusionnel ouvert-ouvert

$$H\ (p) = \frac{\mathcal{L}\left[C\ (1,\ t)\right]}{\mathcal{L}\left[C\ (0,\ t)\right]} = \exp\left[\frac{P_e}{2}\left(1 - \sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}\right)\right] \tag{5}$$

Le détail des calculs permettant d'obtenir les expressions (3) et (4) figure en annexe

Le modèle fermé-ouvert a comme conditions aux limites :

$$\begin{aligned} &C\ (0,\ t) = C_e(t) + \frac{1}{P_e}\ \frac{\partial C}{\partial z}\ (0,\ t) \\ &\frac{\partial C}{\partial z}\ (z,\ t) \longrightarrow 0 \quad \text{quand } z \longrightarrow +\infty \end{aligned} \tag{6}$$

Dans ce cas, le signal d'entrée $C_e(t)$ est bien une impulsion de DIRAC et la fonction de transfert correspondante

$$H(p) = \frac{\exp\left[\frac{P_e}{2}\left(1 - \sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}\right)\right]}{\frac{1}{2} + \frac{1}{2}\ \sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}} \tag{7}$$

Le modèle fermé-fermé a comme condition aux limites les conditions de DANCKWERTS

$$C(0, t) = C_e(t) + \frac{1}{P_e} \frac{\partial C}{\partial z}(0, t)$$
$$\frac{\partial C}{\partial z}(1, t) = 0 \qquad (8)$$

Il lui correspond la fonction de transfert suivante

$$H(p) = \frac{P_e (a-b)}{a^2 \exp(-b) - b^2 \exp(-a)} \qquad (9)$$

avec

$$a = \frac{P_e}{2}\left[1 + \sqrt{1 + \frac{4 \tau p}{P_e}} \right]$$
$$b = \frac{P_e}{2}\left[1 - \sqrt{1 + \frac{4 \tau p}{P_e}} \right] \qquad (10)$$

Le modèle à bacs en cascade

C'est le plus simple des modèles discrets. Il suppose l'appareil divisé en N bacs de volume identique, chacun étant parfaitement agité. Il se présente sous la forme d'une équation différentielle faisant intervenir des différences finies

$$\frac{\tau}{N} \frac{dC_i}{dt} + C_i(t) = C_{i-1}(t) \; ; \; i = 1 \text{ à } N \qquad (11)$$

La fonction de transfert correspondante est

$$H(p) = \frac{\mathcal{L}\left[C_N(t)\right]}{\mathcal{L}\left[C_o(t)\right]} = \left(\frac{1}{1 + \frac{\tau p}{N}}\right)^N \qquad (12)$$

Quand le nombre de bacs, N, augmente, le modèle (11) tend vers le modèle piston diffusionnel (1) avec $P_e \simeq 2 N$ [44, 45]

II - COMPARAISON DES MODELES.-

Le but de cette comparaison est de déterminer si, à partir d'une réponse impulsionnelle expérimentale, il est possible de choisir un modèle d'écoulement parmi les quatre mentionnés au paragraphe précédent. En restreignant le choix parmi les trois formes du modèle piston diffusionnel il s'agit de déterminer si la réponse impulsionnelle est caractéristique des conditions aux limites. Dans un deuxième temps, la question posée est de savoir s'il existe des différences significatives entre la réponse impulsionnelle du modèle à bacs en cascade et celles des modèles continus.

La méthode utilisée pour effectuer cette comparaison consiste à calculer pour chaque modèle un certain nombre de réponses impulsionnelles théoriques, puis à opérer une identification paramétrique sur ces résultats, en employant un modèle différent. Une étude semblable a été menée par D.B. BISCHOFF[11] pour déterminer l'influence des conditions aux limites sur le résultat de la détermination du nombre de PECLET par la méthode des moments.

II-1 - COMPARAISON DES MODELES PISTON DIFFUSIONNEL .-

Les réponses impulsionnelles théoriques de chacune des formes du modèle piston diffusionnel ont été calculées pour un temps de passage égal à l'unité et des nombres de PECLET échelonnés entre 10 et 40. En pratique, l'identification a été menée dans le domaine fréquentiel, suivant la méthode indiquée dans le chapitre III, par minimisation d'un critère

$$C(\underline{a}) = \sum_{i=0}^{N-1} \left| H_1(f) - H_2(f, \underline{a}) \right|^2 \qquad (13)$$

Dans ce critère H_1 et H_2 sont les fonctions de transfert de deux formes différentes du modèle piston diffusionnel. Les paramètres du premier modèle étant fixés, les valeurs de $H_1(f)$ sont calculées, et servent de données pour l'identification des paramètres de l'autre modèle. L'utilisation du critère (13), exprimé dans le domaine fréquentiel, rend inutile le calcul des réponses impulsionnelles.

Le tableau 3 présente les résultats de cette identification. Les valeurs du critère au minimum correspondent à un écart résiduel extrêmement faible, ce qui indique que la réponse impulsionnelle de l'un des modèles piston diffusionnel peut toujours être approchée par celle d'un des deux autres. En d'autres termes, cela signifie que la réponse impulsionnelle n'est pas caractéristique des conditions aux limites. Par ailleurs on ne retrouve pas exactement les valeurs initiales données aux paramètres P_e et τ.

Si la réponse ajustée et la réponse initiale sont très proches l'une de l'autre, les deux courbes doivent avoir même moment du premier et du deuxième ordre. Les calculs qui figurent dans l'annexe montrent qu'en ce cas on doit avoir les relations suivantes entre les paramètres :

$$\frac{\tau_{FF}}{\tau_{FO}} = 1 + \frac{1}{P_e} \qquad P_{e_{FO}} = P_{e_{FF}} + 0{,}5$$

$$\frac{\tau_{FF}}{\tau_{OO}} = 1 + \frac{2}{P_e} \qquad P_{e_{OO}} = P_{e_{FF}} + 1{,}0 \qquad (14)$$

$$\frac{\tau_{FO}}{\tau_{OO}} = \frac{1 + \frac{2}{P_e}}{1 + \frac{1}{P_e}} \qquad P_{e_{OO}} = P_{e_{FO}} + 0{,}5$$

Dans ces expressions les indices FF, FO, OO correspondent aux conditions aux limites "fermé-fermé","fermé-ouvert", et "ouvert-ouvert". Les figures 2 et 3 montrent que ces relations décrivent les résultats obtenus avec une erreur inférieure à 1,5 % pour le temps et inférieure à 2 % pour le nombre de PECLET. L'écart maximum se situe à la frontière du domaine étudié, $P_e = 10$; il correspond au fait qu'on a supposé $1/P_e$ petit devant 1 dans le calcul des expressions (14). Cet accord indique que les réponses ajustées et les réponses initiales ont leurs deux premiers moments très voisins, ce qui confirme les indications données par les valeurs du critère d'écart au minimum. Une deuxième conclusion est que le modèle ajusté par la méthode des moindres carrés est très proche de celui déterminé par la méthode des moments.

Comparaison avec le modèle à bacs en cascade

Les résultats sont différents lorsqu'on compare le modèle à N bacs en cascade (NBC) à chacune des trois formes du modèle piston diffusionnel (tableau 4). La valeur plus élevée du critère indique que les réponses à une impulsion sont plus nettement différenciables, et ceci d'autant plus que le nombre de PECLET est faible. De plus les relations obtenues en égalant les moments des réponses :

$$\frac{\tau_{NBC}}{\tau_{FF}} = 1 \qquad P_{e_{FF}} = 2\,N-1$$

$$\frac{\tau_{NBC}}{\tau_{FO}} = 1 + \frac{1}{P_e} \qquad P_{e_{FO}} = 2\,N - 0{,}5 \qquad (15)$$

$$\frac{\tau_{NBC}}{\tau_{OO}} = 1 + \frac{2}{P_e} \qquad P_{e_{OO}} = 2\,N$$

sont mal vérifiées. Les figures 4 et 5 montrent que les relations suivantes sont plus appropriées

$$\frac{\tau_{NBC}}{\tau_{FF}} = \frac{1}{1 + \frac{0{,}5}{P_e}} \qquad P_{e_{FF}} = 2\,N - 2{,}75$$

$$(16)$$

$$\frac{\tau_{NBC}}{\tau_{FO}} = 1 + \frac{0{,}5}{P_e} \qquad P_{e_{FO}} = 2\,N - 2{,}1$$

$$\frac{\tau_{NBC}}{\tau_{OO}} = 1 + \frac{1{,}5}{P_e} \qquad P_{e_{OO}} = 2\,N - 1{,}65$$

Ce désaccord confirme la possibilité de différencier un modèle à N bacs en cascade d'un modèle piston diffusionnel à partir de données expérimentales de bonne qualité.

Une deuxième conclusion est que, dans ce cas, le meilleur modèle au sens des moindres carrés n'est pas identique à celui donné par la méthode des moments.

o

o o

- C H A P I T R E VI -

ANALYSE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

— 0 —

Ce chapitre présente les résultats obtenus en ajustant sur les données expérimentales de A. BORRELL, les réponses impulsionnelles de plusieurs modèles d'écoulement. La méthode d'identification utilisée consiste à minimiser, à l'aide de l'algorithme de GAUSS-NEWTON, un critère d'écart dans le domaine fréquentiel (voir chapitre III). Les données considérées ici concernent la phase continue de la colonne, en l'absence de la phase dispersée. Les méthodes mises au point à partir de ces expériences ont ensuite été utilisées pour étudier le comportement de la phase continue en présence de la phase dispersée, puis celui de la phase dispersée elle-même. Les résultats correspondants figurent dans le mémoire de thèse de A. BORRELL.

I - MODELE PISTON DIFFUSIONNEL.-

Une série de données obtenues dans les conditions expérimentales résumées dans le tableau 5 a été identifiée à l'aide du modèle piston diffusionnel fermé-ouvert. Les résultats sont rassemblés dans le tableau 6 A partir de ceux-ci il est possible de calculer la valeur du coefficient de diffusion apparente $\mathcal{D} = L^2/(P_e \tau)$, sachant que la distance entre le point d'entrée de la phase continue et le point de mesure est L = 0,90 m. Ces valeurs sont portées sur la figure 6 en fonction de la vitesse de passage ; les points encerclés correspondent aux essais pour lesquels le critère d'écart est resté supérieur à $2,6 \cdot 10^{-3}$. Cette figure montre que les résultats sont mal corrélés pour les vitesses de rotation des disques les plus élevées (2000 et 2500 t/mn). Par ailleurs l'étude de la forme de la surface critère au voisinage de l'optimum indique que les courbes isocritères sont des ellipses très aplaties (le rapport des axes varie de 0,01 à 0,03), orientées parallèlement à l'axe portant les nombres de PECLET ; à l'intérieur du domaine dans lequel le critère vaut 1,1 fois le critère minimum, la variation relative maximum du nombre de PECLET se situe entre 1 % et 4 %. Ces résultats montrent que la réponse du modèle piston diffusionnel à une impulsion est beaucoup plus sensible à une variation de temps de passage, τ, qu'à une variation du nombre de PECLET, P_e; ceci peut expliquer la dispersion des coefficients de diffusion apparente.

Les figures 7 et 8 montrent comment les réponses obtenues lors des essais 3 et 6 sont traduites par le modèle : l'accord est bon, toutefois les écarts entre modèle et expérience se reproduisent systématiquement pour tous les essais. Les figures 9 et 10 sont la contrepartie des précédentes dans le domaine fréquentiel. Les courbes supérieures représentent le logarithme du module des fonctions de transfert expérimentale et théorique ; la courbe inférieure, la différence entre leurs phases : elles montrent les difficultés du modèle à traduire les résultats expérimentaux à fréquence élevée.

II - MODELE PISTON DIFFUSIONNEL MODIFIE.-

Cette modification porte sur les conditions aux limites du modèle piston diffusionnel "fermé-ouvert". A la place de la condition classique à l'entrée de la colonne, donnée par la relation (6), ce modèle suppose que l'on a

$$C\,(0,\ t) = C_e(t) + \frac{1}{P_e^*}\ \frac{\partial C}{\partial z}\,(0,\ t) \qquad (17)$$

P_e^* est un nombre de PECLET local qui peut être différent du paramètre P_e caractéristique de l'ensemble de la colonne. La fonction de transfert associée à ce nouveau modèle est

$$H(p) = \frac{\exp\left[\frac{P_e}{2}\left(1 - \sqrt{1 + \frac{4\,\tau\,p}{P_e}}\right)\right]}{(1-\alpha) + \alpha\sqrt{1 + \frac{4\,p}{P_e}}} \qquad (18)$$

avec

$$\alpha = \frac{P_e}{2\,P_e^*}$$

Le traitement des résultats expérimentaux à l'aide de ce modèle amène des difficultés liées au fait que la réponse impulsionnelle est peu sensible aux conditions aux limites ; par conséquent le critère est peu sensible aux variations de α et les surfaces isocritères ont la forme d'ellipsoïdes très allongés. Cette situation rend divergente la méthode d'optimisation de GAUSS-NEWTON. Pour y remédier la minimisation du critère

a été conduite en deux étapes : pour une valeur donnée de α la méthode habituelle minimise l'écart par rapport aux paramètres P_e et τ ; puis la valeur de α est modifiée suivant l'algorithme du nombre d'or pour déterminer le minimum minimorum . Les résultats obtenus, présentés dans le tableau 7 amènent aux conclusions suivantes :

1°) L'introduction d'un paramètre supplémentaire ne permet qu'une faible amélioration du critère, de 0 % à 6 %.

2°) La valeur optimale du paramètre α se situe entre 1,03 et 1,09 pour 26 essais sur 30 ; les quatre autres correspondent à des cas où l'amélioration du critère est très faible : 0,4 %, 0,9 %, 0 % et 0,1 %.

3°) Pour α = 0,5 ce modèle est identique au modèle piston diffusionnel fermé-ouvert ; le fait que α puisse s'écarter de cette valeur sans beaucoup modifier le critère confirme le peu de sensibilité de la répong réponse impulsionnelle vis-à-vis des conditions aux limites.

4°) Pour α = 1 le modèle (18) devient formellement identique à la transformée de LAPLACE de la réponse à une impulsion du modèle "ouvert-ouvert" (3) . Le grand nombre de résultats trouvés au voisinage de cette valeur semble indiquer que les conditions "ouvert-ouvert" sont plus appropriées.

5°) Dans les cas où le modèle modifié optimum est voisin du modèle "ouvert-ouvert", les relations (14)

$$\frac{\tau_{FO}}{\tau_{OO}} = \frac{1 + \frac{2}{P_e}}{1 + \frac{1}{P_e}} \qquad P_{e_{OO}} = P_{e_{FO}} + 0,5$$

permettent de retrouver les valeurs de P_e et τ obtenues avec le modèle fermé-ouvert. Ceci montre que pour un même essai le modèle "ouvert-ouvert" optimal est très proche du modèle "fermé-ouvert" optimal.

III - MODELE PISTON DIFFUSIONNEL AVEC RETARD.-

Il est constitué par un élément de retard pur dans lequel le signal d'excitation est retardé d'un temps $\alpha\tau$ sans être modifié, suivi par un élément piston diffusionnel "fermé-ouvert" caractérisé par un temps de passage $(1-\alpha)\tau$ et un nombre de PECLET P_e. Ainsi le temps de passage dans l'ensemble est τ et le paramètre α mesure l'importance relative de chaque élément. La fonction de transfert associée à ce modèle est

$$H(p) = \frac{\exp\left[\frac{P_e}{2}\left(1 - \sqrt{1 + \frac{4(1-\alpha)\tau p}{P_e}}\right)\right]}{\frac{1}{2} + \frac{1}{2}\sqrt{1 + \frac{4(1-\alpha)\tau p}{P_e}}}\, e^{-\alpha\tau p} \qquad (19)$$

Les résultats obtenus, présentés dans le tableau 8 , sont caractérisés par les points suivants :

1°) Par rapport au modèle piston diffusionnel, ce modèle produit une diminution du critère d'écart pouvant atteindre 30 %. Les trois cas où le critère n'est pas diminue correspondent à un échec de la méthode d'optimisation.

2°) Le temps de passage total, τ, est identique à celui obtenu avec le modèle piston diffusionnel.

3°) Les valeurs du paramètre α sont négatives dans 28 essais sur 30. Ce résultat, a priori étrange, suggère que l'impulsion de DIRAC a déjà subi une déformation lors de son entrée dans l'appareil. Cette explication met en cause la validité du modèle piston diffusionnel aux extrémités de la colonne.

4°) L'étude de la forme des surfaces isocritères au voisinage de l'optimum montre que celles-ci sont des ellipsoïdes très allongés (le rapport des longueurs du petit et du grand axe varie entre $8 \cdot 10^{-5}$ et $4 \cdot 10^{-4}$) ; ceci explique les difficultés rencontrées pour atteindre l'optimum. D'autre part cette étude indique que le modèle est très sensible à une variation du paramètre τ ; en ce qui concerne les paramètres P_e et α, l'existence d'une vallée encaissée, presque droite, dans le plan (P_e, α) indique qu'une

variation de l'un de ces paramètres peut toujours être compensée par une variation adéquate de l'autre, leur détermination n'est donc pas très précise. Cette situation aurait justifié l'utilisation d'une méthode d'optimisation à deux étages comme dans le cas du modèle piston diffusionnel modifié ; toutefois, devant les difficultés d'interprétation des résultats, ces calculs n'ont pas été effectués.

5°) Les figures 11 et 12 montrent comment le modèle s'ajuste aux réponses obtenues lors des essais 3 et 6 ; les figures 13 et 14 sont leurs équivalents dans le domaine fréquentiel. La comparaison avec les ajustements obtenus par le modèle piston diffusionnel seul n'indique pas d'amélioration importante.

IV - MODELE A BACS EN CASCADE.-

Les résultats obtenus à l'aide de ce modèle à deux paramètres sont présentés dans le tableau 9 . La valeur du critère final est en général plus élevée que celle obtenue avec le modèle piston diffusionnel "fermé-ouvert" ; et les valeurs optimales des paramètres données par chaque modèle se corrèlent très bien à l'aide des relations (16).

$$\frac{\tau_{NBC}}{\tau_{FO}} = 1 + \frac{0,5}{P_e} \qquad P_{e_{FO}} = 2\,N - 2,1$$

Ceci montre que l'utilisation du modèle à bacs en cascade n'introduit aucun élément nouveau. Comme par ailleurs il donne un écart résiduel plus important que le modèle piston diffusionnel, il n'a aucun titre pour être retenu.

V - MODELE A BACS AVEC RETOUR.-

Ce modèle à trois paramètres proposé par STAINTHORP et SUDALL[51] ajoute au modèle à bacs en cascade un courant de retour dont le débit vaut δ fois la valeur du débit net dans le sens de l'écoulement. Le comportement de chaque élément est décrit par l'équation

$$\frac{\tau}{N}\,\frac{dC_i}{dt} + (1 + 2\delta)C_i(t) = (1+\delta)C_{i-1}(t) + \delta\, C_{i+1}(t) \qquad (20)$$

Cette équation différentielle aux différences finies est intégrée avec les conditions aux limites suivantes :

A l'entrée, l'équation

$$C_e(t) = (1 + \delta)\, C_o(t) - \delta\, C_1(t) \tag{21}$$

indique que l'alimentation, de concentration $C_e(t)$, est mélangée avec le courant de retour provenant du premier bac, de concentration $C_1(t)$.

A la sortie, le nombre de bacs est supposé infini au-delà du point de mesure et l'équation

$$\frac{dC_i}{dt} \xrightarrow[i \to \infty]{} 0 \tag{22}$$

indique que la concentration dans le dernier bac ne fluctue pas. La fonction de transfert correspondante est

$$H(p) = \frac{G\,(p)^N}{1 + \delta\,(1 - G(p))} \tag{23}$$

G(p) étant la racine de plus petit module de l'équation caractéristique

$$\frac{\delta}{1 + 2\delta}\, G^2 - \left(1 + \frac{\tau}{N}\, p\right) G + \frac{1 + \delta}{1 + 2\delta} = 0 \tag{24}$$

Quand le débit de retour est nul, ce modèle se ramène au modèle à N bacs en cascade. Quand N et δ tendent vers l'infini en conservant un rapport constant, l'équation (20) devient équivalente à l'équation aux dérivées partielles suivantes :

$$\tau \frac{dC}{dt} = - \frac{\partial C}{\partial z} + \lim \left[\frac{\delta}{N}\right] \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \tag{25}$$

dans laquelle on reconnaît le modèle piston diffusionnel avec $\lim (N/\delta) = P_e$.

Cette similitude entre le modèle à bacs en cascade avec retour et le modèle piston diffusionnel est bien connue ; elle est utilisée pour approcher le modèle continu d'extraction de MIYAUCHI par le modèle à bacs avec mélange en retour. La relation suivante (47) est alors utilisée pour passer d'un modèle à l'autre :

$$P_e = \frac{N}{\delta + 0,5} \qquad (26)$$

Pour $\delta = 0$ cette relation n'est pas en accord avec celle obtenue en comparant le modèle piston diffusionnel fermé-ouvert avec le modèle à bacs en cascade

$$P_{e_{FO}} \simeq 2\,(N - 1)$$

Cette limite peut toutefois être retrouvée en modifiant légèrement la relation (26)

$$P_{e_{FO}} = \frac{N - 1}{\delta + 0,5} \qquad (27)$$

L'identification des réponses expérimentales à l'aide de ce modèle et de la méthode du GAUSS-NEWTON s'est heurtée à des difficultés de convergence liées à l'existence d'une vallée très allongée dans le plan des paramètres (N, δ). Cette difficulté a été tournée en réalisant une optimisation en deux étapes : pour une valeur donnée de δ la méthode de GAUSS-NEWTON a servi à déterminer les paramètres N et τ optimaux, puis δ a été ajusté par la méthode du nombre d'or. En fait, comme cette méthode nécessite un intervalle de variation borné, ce n'est pas δ qui a été ajusté mais δ^* donné par la relation $\delta = \mathrm{tg}\ \frac{\pi}{2}\ \delta^*$. Les résultats obtenus, présentés dans le tableau 10 conduisent aux remarques suivantes :

1°) Le pourcentage d'amélioration de la valeur du critère final par rapport au modèle piston diffusionnel fermé-ouvert atteint 43 %.

2°) La valeur du nombre de PECLET obtenue en portant les valeurs de N et δ dans la relation (27) est légèrement inférieure à celle obtenue

par identification avec le modèle piston-diffusionnel "fermé-ouvert" ; cet écart ne dépasse pas 0,4, ce qui permet de considérer la relation (27) comme étant vérifiée dans le domaine étudié (P_e = 20 à P_e = 70).

3°) Le temps de passage est pratiquement identique à celui indiqué par le modèle piston-diffusionnel "fermé-ouvert".

4°) Les valeurs de N et δ varient de manière peu cohérente, ce qui semble indiquer que le modèle à bacs avec retour améliore le critère grâce à la souplesse supplémentaire que lui confère un troisième paramètre, sans pour autant que sa structure soit mieux adaptée à la description du comportement de la colonne. Celle-ci comportant 40 cellules, un nombre de bacs voisin de cette valeur aurait été un résultat plus encourageant. Ce modèle à trois paramètres ne fournissant que deux valeurs significatives, τ le temps de passage et un nombre de PECLET calculé d'après la relation (27), il pourrait être intéressant de l'utiliser à la place du modèle piston-diffusionnel en fixant le nombre de bacs par des considérations sur la géométrie de la colonne, ce qui le ramènerait à un modèle à deux paramètres, τ et δ.

VI - MODELE A QUATRE PARAMETRES.-

Un modèle à quatre paramètres supposant dans la colonne un phénomène d'échange entre une zone stagnante et une zone en écoulement piston diffusionnel n'a donné aucun résultat significatif. La méthode de GAUSS-NEWTON étant instable, il lui a été substitué une méthode plus lente mais toujours stable utilisant l'algorithme de HOOKE et JEEVES modifié. Les résultats indiquent la présence d'une vallée très allongée dans laquelle un grand nombre de modèles ont des réponses impulsionnelles très voisines, ce qui interdit d'identifier simultanément tous les paramètres. Enfin l'amélioration apportée au critère n'était pas très importante. Ces conclusions rejoignent celles qui sont exprimées dans l'étude de VILLERMAUX et VAN SWAAIJ[52].

VII - CONCLUSIONS.-

La méthode d'identification

Un élément important de cette méthode est l'utilisation de la transformation numérique de FOURIER. A. BORRELL a traité les mêmes données expérimentales en utilisant la réponse temporelle du modèle piston-diffusionnel et obtenu exactement les mêmes résultats avec un temps de calcul beaucoup plus long : ceci indique que l'usage de FFT n'a pas introduit d'erreurs.

La méthode d'optimisation de GAUSS-NEWTON est efficace et précise dans tous les cas où la réponse du modèle est également sensible à tous les paramètres. Dans le cas contraire la surface critère présente une vallée étroite qui rend la méthode instable ; il est alors possible de conduire l'optimisation en deux étapes, ce qui présente l'inconvénient d'augmenter beaucoup le volume des calculs (il est multiplié par un facteur de 5 à 10). La comparaison de la méthode à deux étages avec la version améliorée de la méthode de HOOKE et JEEVES est à l'avantage de la première.

Les modèles

Le modèle piston diffusionnel "fermé-ouvert" ne représente pas complètement les résultats expérimentaux : il reste un résidu systématique qu'aucun autre modèle n'a réussi à réduire sérieusement. L'amélioration apportée par les modèles à trois paramètres n'étant pas appréciable, cette augmentation de complexité n'est pas justifiée. Le modèle à bacs en cascade étant écarté, il est possible d'utiliser soit le modèle piston diffusionnel avec les conditions aux limites "fermé-ouvert" ou "ouvert-ouvert, soit le modèle à bacs avec retour dans lequel le nombre d'éléments est fixé par la géométrie de la colonne (N = 40 dans le cas présent).

L'étude de la sensibilité du critère montre que le temps de passage est identifié avec beaucoup de précision ; les petits écarts constatés entre les résultats des différents modèles sont liés au choix des conditions aux limites. Ce résultat suggère qu'il peut être intéressant d'utiliser la valeur de τ ainsi obtenue pour calculer la rétention de la colonne, opération peu commode dans une colonne à disques rotatifs. L'utilisation de plusieurs

points de mesure permettrait de vérifier la constance de cette rétention tout au long de l'appareil.

Enfin la valeur du nombre de PECLET obtenue est peu sensible aux conditions aux limites ; elle caractérise essentiellement l'écoulement dans la colonne.

o

o o

T R O I S I E M E P A R T I E

ETUDE DES PROFILS DE CONCENTRATION

— oOo —

Cette étude porte sur une vingtaine de profils de concentration obtenus expérimentalement par A. BORRELL pour des conditions opératoires indiquées dans le tableau 11. Ces résultats traduisent la somme des effets des différents mécanismes intervenant dans l'extraction ; ils sont donc à la fois particulièrement significatifs du fonctionnement de la colonne, et délicats à analyser.

Il est relativement facile, en s'appuyant sur les recherches antérieures, de faire une série d'hypothèses plausibles, d'en déduire un modèle faisant intervenir les mécanismes d'écoulement et d'échange, puis d'identifier ses paramètres. La structure du modèle est en général convenable et les trois ou quatre paramètres qui demeurent libres offrent bien souvent assez de souplesse pour traduire de manière satisfaisante les résultats expérimentaux. Il est toutefois difficile de se prononcer sur la signification réelle des paramètres identifiés : en effet chacune des hypothèses n'est vérifiée que de manière imparfaite, et les écarts par rapport à la situation idéale prévue par le modèle sont en général rattrapés par un ajustement différent des paramètres. Cette aptitude des paramètres à se modifier pour pallier les défaillances d'une hypothèse est la source de difficultés, car d'une part les hypothèses erronnées ne sont pas automatiquement détectées, et d'autre part l'interprétation de la signification des paramètres est rendue plus délicate. Ces difficultés, qui existent chaque fois que l'on identifie des paramètres, croissent très rapidement avec la complexité du modèle et le nombre de ses paramètres.

Pour tenter de résoudre ce problème par étapes, l'étude des profils de concentration a été divisée en deux parties. La première concerne la sensibilité des paramètres du modèle de MIYAUCHI et SLEICHER aux écarts par rapport aux hypothèses ; la deuxième porte sur l'exploitation des mesures de profil de concentration. Le modèle utilisé est identique à celui présenté dans le Chapitre I , avec en plus l'hypothèse d'une relation d'équilibre linéaire, ce qui permet de le mettre sous la forme :

$$\frac{1}{P_x}\frac{d^2x}{dz^2} - \frac{dx}{dy} + N_x\,(x^* - x) = 0$$

$$\frac{1}{P_y}\frac{d^2y}{dz^2} + \frac{dy}{dz} + \frac{N_x}{F}\,(y^* - y) = 0 \qquad (1)$$

Cette expression fait intervenir le facteur d'extraction $F = (m\,\frac{D_y}{D_x})$, m étant le coefficient de partage intervenant dans la loi d'équilibre $y = mx$. Les conditicns aux limites sont celles mentionnées dans le Chapitre I.

o

o o

- CHAPITRE VII -

SENSIBILITE DES PARAMETRES DU MODELE DE MIYAUCHI

— O —

I - PRINCIPE DE L'ETUDE.-

La détermination des paramètres du modèle de MIYAUCHI est effectuée par la méthode du modèle[1] en minimisant un critère mesurant l'écart entre les concentrations obtenues expérimentalement et celles calculées à partir du modèle. La figure 15 présente un schéma de principe de la méthode. Le critère utilisé a la forme suivante

$$C(\underline{a}) = \sum_{i=1}^{N} \left[x_i - x(z_i, \underline{a})\right]^2 + \left[\frac{y_i}{m} + \frac{y(z_i, \underline{a})}{m}\right]^2 \qquad (2)$$

dans laquelle $\underline{a}$ est un vecteur ayant pour composantes les paramètres à déterminer, x_i et y_i sont les valeurs mesurées, $x(z_i, \underline{a})$ et $y(z_i, \underline{a})$ étant celles données par le modèle aux points d'abscisse z_i. La constante m est le coefficient de partage ; sa présence dans le critère donne un poids équivalent aux écarts sur chacune des deux phases, ce qui est justifié par le fait que les erreurs de mesure de concentration sont, en première approximation, du même ordre. Une étude statistique de ces erreurs aurait permis une meilleure pondération des termes du critère, donc une estimation plus précise des paramètres. Ce degré de raffinement n'est toutefois pas indispensable dans cette étude car la validité même du modèle est en cause. Les points d'abscisse z_i auxquels les différentes concentrations sont considérées sont ceux pour lesquels A. BORRELL a donné des résultats expérimentaux[53].

Pour minimiser le critère (2) il faut intégrer le modèle de MIYAUCHI ce qui nécessite de fixer les valeurs de ses paramètres, qui sont au nombre de sept :

- les quatre nombres sans dimension P_x, P_y, N_x et F
- les deux concentrations d'entrée x_e et y_e
- le coefficient de partage m.

Il n'est pas souhaitable de confier à un algorithme d'optimisation la détermination simultanée de ces sept paramètres car la quantité d'information contenue dans les résultats expérimentaux étant finie, plus le nombre de paramètres à déterminer augmente, plus est grande l'incertitude sur chaque estimation.

Chaque fois qu'un paramètre peut être déterminé directement par des mesures particulières, il est donc a priori intéressant de le considérer comme une donnée du problème et non comme un paramètre d'optimisation. Dans le cas présent quatre paramètres sont susceptibles d'être considérés comme des données du problème, ce sont les deux concentrations d'entrée, le coefficient de partage et le facteur d'extraction.

Avant de classer un paramètre dans le groupe des données il faut s'interroger sur la précision avec laquelle il doit être connu pour ne pas perturber les résultats de l'identification. En effet, toute erreur sur la valeur d'un paramètre considéré comme donnée produit une distortion du modèle, ce qui déplace le minimum du critère (2). La sensibilité de l'identification aux erreurs commises sur les données fournies au modèle a été mesurée de la manière suivante : des points des profils de concentration ont été calculés pour un ensemble de valeurs des paramètres, puis ils ont été utilisés comme support d'une opération d'identification dans laquelle l'une des données introduite dans le modèle était légèrement altérée. Le critère minimisé était identique à celui indiqué dans l'expression (2). La figure 16 présente un schéma de principe de cette détermination.

Une première étude, exposée dans le paragraphe suivant et dans laquelle les paramètres d'optimisation étaient P_x, P_y et N_x, a montré la grande sensibilité de l'identification à une erreur sur le facteur d'extraction. Par la suite ce paramètre a systématiquement été placé dans le groupe des paramètres d'optimisation, celui-ci étant alors constitué par les nombres sans dimension P_x, P_y, N_x et F, ou, ce qui est équivalent et plus symétrique, par les nombres P_x, P_y, N_x et N_y. Une deuxième étude, exposée au paragraphe III, a permis d'évaluer la sensibilité de la méthode à une erreur sur le coefficient de partage. L'influence des erreurs sur les concentrations d'entrée n'a pas été étudiée, celles-ci pouvant être mesurées avec une précision bien supérieure à celle obtenue pour les concentrations à l'intérieur de la colonne.

Une méthode similaire a été utilisée pour déterminer comment un écart par rapport aux hypothèses servant à établir le modèle de MIYAUCHI intervenait sur le résultat de l'identification. En modifiant légèrement certaines hypothèses, des modèles différents ont été obtenus, dont l'intégration numérique a donné des séries de profils de concentration. Ceux-ci ont ensuite servi

de support à une identification menée à l'aide du modèle de MIYAUCHI. Le critère minimisé était identique à celui indiqué dans l'expression (2). La figure 17 présente un schéma de principe de cette étude.

Les hypothèses mises en cause sont la validité de la condition aux limites donnant le saut de concentration à l'entrée d'une phase, la linéarité de la relation d'équilibre, la constance du produit $K_x a$ le long de l'appareil et l'uniformité de la retenue. Cette partie de l'étude a nécessité l'intégration de modèles d'extraction continus non linéaires, en utilisant les méthodes exposées dans le chapitre IV.

II - INFLUENCE DU FACTEUR D'EXTRACTION.-

Cette étude a été faite avec les valeurs suivantes des paramètres : $x_e = 1,0$ $y_e = 0,0$ $m = 1,0$ et plusieurs ensembles de valeurs de P_x, P_y, N_x et F indiquées dans le tableau 12. Lors de l'identification le facteur d'extraction introduit comme donnée dans le modèle était inférieur de 5 % à sa valeur initiale, ce qui correspond à une légère sous-estimation de la valeur relative du débit de la phase y. Les sensibilités des paramètres identifiés, P_x, P_y, N_x, sont présentées dans le tableau 12; elles sont calculées par la relation

$$\frac{\Delta a}{a} = \frac{a_{identifié} - a_{initial}}{a_{initial}} \qquad (3)$$

L'examen du tableau montre qu'une sous-estimation du facteur d'extraction utilisé dans le modèle conduit à identifier un nombre d'unité de transfert et un nombre de PECLET relatif à la phase x inférieurs à leurs valeurs réelles, le nombre de PECLET se rapportant à la phase y étant plus élevé. L'importance de ces écarts dépend du point de fonctionnement défini par les valeurs initiales de N_x, P_x, P_y et F. Les résultats expérimentaux ayant été obtenus dans des conditions voisines de celles explorées ici, et la précision sur la mesure des débits étant de l'ordre de 3 % à 5 %, cette étude montre que l'introduction du facteur d'extraction comme donnée dans le modèle, peut conduire à des erreurs importantes sur la détermination des nombres de PECLET,

et qu'il est préférable de placer le facteur d'extraction dans le groupe des paramètres d'optimisation avec N_x, P_x et P_y.

Le rapport des débits peut également être obtenu à partir d'un bilan global sur la colonne. Dans la mesure où les concentrations de sortie de chaque phase sont connues avec une précision suffisante, ceci constitue une estimation qui permet de conduire l'identification avec seulement trois paramètres. Cette méthode n'a pas été retenue car les mesures de concentration de sortie n'ont pas été jugées assez fiables.

III - INFLUENCE DU COEFFICIENT DE PARTAGE.-

La mesure de l'influence d'une erreur sur le coefficient de partage introduit dans le modèle est menée sur le même principe que l'étude précédente. Pour un ensemble de conditions de fonctionnement caractérisées par les valeurs initiales des paramètres indiquées dans le tableau 13, des profils de concentration ont été calculés ; puis ces résultats ont servi à une identification utilisant un modèle dans lequel le coefficient de partage était majoré de 2 %. Compte tenu des résultats de l'étude sur le facteur d'extraction, celui-ci a été considéré comme paramètre d'optimisation ; en pratique l'optimisation a porté sur quatre variables, P_x, P_y, N_x et $N_y = \frac{N_x}{F}$, nombre d'unités de transfert rapporté à la phase dispersée.

Les résultats montrent que le nombre d'unités de transfert est d'autant plus sensible à une surestimation du coefficient de partage qu'il est lui-même important. Ils indiquent une modification du facteur d'extraction dans le sens de l'erreur commise sur m, ce qui atténue l'erreur d'estimation sur le rapport des débits. En ce qui concerne les nombres de PECLET, leurs règles de variation sont moins claires. Cette étude montre l'importance d'une connaissance précise du coefficient de partage, une erreur de 2 % liée à une variation de température, par exemple, pouvant être aisément commise.

IV - INFLUENCE DU SAUT DE CONCENTRATION.-

Le saut de concentration à l'entrée de chaque phase est traduit, dans le modèle de MIYAUCHI, par des conditions aux limites qui résultent d'un bilan matière et d'une hypothèse selon laquelle le mélange longitudinal est représenté par un même coefficient de diffusion, donc par un même nombre de PECLET, sur toute la longueur de la colonne :

$$x\,(0^+) = x_e + \frac{1}{P_x}\,\frac{dx}{dz}\,(0^+) \qquad (4)$$

$$y\,(1^-) = y_e - \frac{1}{P_y}\,\frac{dy}{dz}\,(1^-) \qquad (5)$$

Pour mesurer l'influence d'une variation du mélange longitudinal à une extrémité de la colonne, le nombre de PECLET apparaissant dans la condition (4) a été modifié :

$$P^*_x = 0{,}9\ P_x \qquad (6)$$

Le nouveau modèle linéaire ainsi obtenu fait intervenir une discontinuité locale du coefficient de diffusion de la phase x ; cette discontinuité ne pouvant avoir de réalité physique, il faut regarder ce modèle comme la représentation approchée d'une situation dans laquelle le coefficient de diffusion varie de manière continue et rapide à une extrémité de l'appareil.

Le modèle modifié a été utilisé dans une opération d'identification des paramètres P_x, P_y, N_x et N_y, ayant comme support des profils calculés avec le modèle classique. Les résultats obtenus pour divers points de fonctionnement sont rassemblés dans le tableau 14. Ils montrent que l'erreur commise se répercute presque exclusivement sur le nombre de PECLET mis en cause par la condition aux limites. Si on ne considère que cette dernière, on constate qu'il faut augmenter de 11 % environ le nombre de PECLET pour traduire le saut de concentration "expérimental", ce qui est pratiquement réalisé pour le facteur d'extraction 1,50. Pour le facteur d'extraction 0,66, cette augmentation est plus faible, et elle diminue avec le nombre d'unités de transfert ; ceci est lié au fait que pour de faibles facteurs d'extraction, le

saut de concentration à l'entrée est peu important ; le nombre de PECLET identifié résulte alors d'un compromis entre la nécessité de traduire l'effet du mélange longitudinal sur le profil de concentration d'une part, et sur le saut de concentration à l'entrée d'autre part, ces deux effets étant d'ordres comparables. La dépendance qui existe pour certaines conditions de fonctionnement entre le nombre de PECLET identifié et le saut de concentration à l'entrée se manifestera de nouveau lors de l'étude des profils expérimentaux de concentration.

V - INFLUENCE D'UNE NON LINEARITE DE LA RELATION D'EQUILIBRE.-

Dans une étude[54] sur le ternaire eau-éther isopropylique-acide acétique, les auteurs proposent la relation d'équilibre suivante

$$y = 0,245\ x + 0,618\ x^2 \qquad (7)$$

dans laquelle y et x sont les fractions massiques d'acide dans la phase organique et dans la phase aqueuse. Cette expression est en accord avec les mesures effectuées par A. BORRELL, comme le montre la figure 29 . Lors des expériences d'extraction, la fraction massique d'acide dans la solution aqueuse d'alimentation de la colonne était de 0,05 : le coefficient de partage variait donc entre 0,276 et 0,245.

Pour mesurer l'influence de cette non-linéarité de la courbe d'équilibre, des profils de concentration théoriques ont été calculés en utilisant la relation d'équilibre (7) et des fractions massiques d'entrée $x_e = 0,05$ et $y_e = 0,0$; puis ils ont servi à une identification utilisant le modèle linéaire classique avec un coefficient de partage m = 0,275. Dans le domaine des valeurs utilisées, l'écart relatif maximum entre les valeurs de y à l'équilibre données par les deux relations est de 5,4 %, pour x = 0,024. Lorsque la relation d'équilibre n'est pas linéaire, le modèle devient lui-même non linéaire et la solution analytique classique n'est plus utilisable pour calculer les profils de concentration ; ce calcul a été fait par intégration numérique, suivant une méthode exposée dans le chapitre IV .

Les résultats obtenus figurent dans le tableau 15. L'identification sous-estime systématiquement le nombre d'unités de transfert, l'écart relatif augmentant avec la valeur de ce nombre ; ceci s'explique par le fait que, pour les valeurs de x comprises entre 0,0 et 0,048, la droite y = mx est toujours légèrement au-dessus de la courbe d'équilibre non linéaire. (La valeur du coefficient de partage m = 0,275 est celle utilisée par A. BORRELL ; elle a été conservée dans cette étude). Le facteur d'extraction est peu affecté ; par contre les erreurs sur les nombres de PECLET sont appréciables.

VI - INFLUENCE D'UNE VARIATION DU PRODUIT $K_x a$ LE LONG DE LA COLONNE.-

Lorsque le produit du coefficient global d'échange par l'aire interfaciale, $K_x a$, varie le long de la colonne, le modèle de MIYAUCHI conserve la même forme, toutefois le nombre d'unités de transfert, N_x, devient une fonction de z. L'influence d'une variation de N_x sur les résultats de l'identification a été mesurée comme précédemment. Des profils théoriques ont été calculés avec l'hypothèse d'une variation de N_x de la forme

$$N_x = N_x^{o} (1 + 0,2 z) \qquad (8)$$

soit une variation de 20 % entre les deux extrémités de la colonne ; puis ces profils ont été identifiés avec le modèle classique. Les résultats obtenus figurent dans le tableau 16. Ils montrent que le facteur d'extraction est peu affecté par cette différence d'hypothèse. Le nombre d'unités de transfert a été comparé à un $\overline{N_x}$ moyen correspondant à l'abscisse z = 0,5 ; ses variations augmentent avec N_x. Enfin la sensibilité des nombres de PECLET diminue quand le nombre d'unités de transfert croît.

VII - INFLUENCE D'UNE VARIATION DE RETENUE LE LONG DE LA COLONNE.-

La retenue de la phase dispersée à l'intérieur de la colonne conditionne d'une part l'aire interfaciale, d'autre part la section de passage de chacune des phases. Ces sections n'interviennent pas directement quand les modèles d'écoulement sont du type piston, par contre avec le modèle piston

diffusionnel, les courants de "diffusion" leur sont directement proportionnels. Lorsque l'hypothèse d'une retenue constante le long de la colonne n'est pas utilisée, des bilans présentés en annexe conduisent au modèle suivant :

$$\frac{1}{P_x(z)} \left[\frac{d^2x}{dz^2} - \frac{1}{1-\varphi(z)} \frac{d\varphi}{dz} \frac{dx}{dy}\right] - \frac{dx}{dz} + N_x (x^* - x) = 0$$

$$\frac{1}{P_y(z)} \left[\frac{d^2y}{dz^2} + \frac{1}{\varphi(z)} \frac{d\varphi}{dz} \frac{dy}{dz}\right] + \frac{dy}{dz} - \frac{D_x}{D_y} N_x (x^* - x) = 0 \qquad (9)$$

avec les conditions aux limites

$$x_e = x(0) - \frac{1}{P_x(0)} \frac{dx}{dz}(0) \quad ; \quad \frac{dx}{dz}(1) = 0 \quad ; \quad x(1) = x_s$$

$$y_e = y(1) + \frac{1}{P_y(1)} \frac{dy}{dz}(1) \quad ; \quad \frac{dy}{dz}(0) = 0 \quad ; \quad y(0) = y_s \qquad (10)$$

Ce modèle fait intervenir la fonction $\varphi(z)$ qui est le taux de retenue de la phase y. Il montre qu'une variation de la retenue ne modifie pas seulement les nombres de PECLET qui deviennent des fonctions de z:

$$P_x(z) = \frac{D_x L}{A_T (1-\varphi) \mathcal{D}_x} \quad \text{et} \quad P_y(z) = \frac{D_y L}{A_T \varphi \mathcal{D}_y} \qquad (11)$$

mais aussi la forme du modèle en introduisant des termes en $\frac{d\varphi}{dz} \frac{dx}{dz}$ qui traduisent les variations du courant de diffusion quand la retenue change.

Des profils de concentration ont été calculés en supposant une variation de retenue linéaire

$$\varphi(z) = 0{,}09\ (1 + 0{,}55\ z) \qquad (12)$$

ce qui correspond à un passage de 9 % à 14 % le long de la colonne.

L'identification avec le modèle de MIYAUCHI donne les résultats présentés dans le tableau 17. La sensibilité du nombre de PECLET est calculée par rapport à une valeur moyenne prise au milieu de la colonne. Les résultats montrent une grande insensibilité du facteur d'extraction et du nombre d'unités de transfert ; les nombres de PECLET sont plus affectés, sans que leur variation soit très importante.

VIII - INFLUENCE DES ERREURS DE MESURE.-

Les erreurs systématiques sur les mesures de concentration sont difficiles à évaluer. Il est possible que les difficultés de prélèvement de la phase dispersée conduisent à des valeurs mesurées décalées du côté de l'équilibre, elles seraient dans le cas présent plus fortes que dans la réalité : ce type d'erreur a des effets identiques à une sous-estimation du coefficient de partage. En l'absence d'une étude expérimentale sur les erreurs systématiques, il est difficile d'évaluer leur influence.

Les erreurs aléatoires influent également sur l'estimation des paramètres. Si l'on admet que les ellipsoïdes d'incertitude ont à peu près la forme des surfaces iso-critères autour du minimum, l'étude de ces surfaces donne des renseignements sur la précision des estimations de chaque paramètre. Pour un modèle donné la forme des surfaces iso-critères dépend essentiellement de la valeur des paramètres au minimum et du groupe des paramètres identifiés ; il y a donc lieu de distinguer les cas de trois et quatre paramètres.

Une étude de la forme des surfaces iso-critères a été menée à la suite de l'identification des paramètres N_x, P_x et P_y du modèle de MIYAUCHI, dans le cadre de la mesure de l'influence des erreurs sur le facteur d'extraction (§ II de ce chapitre). Les surfaces iso-critères sont des ellipsoïdes allongés avec un rapport de leur plus grand à leur plus petit diamètre variant entre 150 et 3000. L'orientation du grand diamètre indique que le modèle est environ dix fois plus sensible aux variations de N_x qu'à celles de P_x ; il est de même environ dix fois plus sensible à P_x qu'à P_y. Cette différence de sensibilité aux deux nombres de PECLET s'explique par le fait que dans tous les cas étudiés P_y est nettement plus élevé que P_x.

Dans le cas de l'identification de quatre paramètres, l'étude de la forme des surfaces iso-critères a été menée à la suite de la mesure de l'influence des variations du coefficient de partage (§ III de ce chapitre). Les identifications ont porté sur les paramètres N_x, $N_y = \frac{N_x}{F}$, P_x et P_y ; c'est donc dans cet espace que sont définies les courbes iso-critères. Dans le tableau 18 sont reportées les valeurs des paramètres au minimum, le rapport du plus petit au plus grand des diamètres des ellipsoïdes, la valeur de la plus petite valeur propre, et les coordonnées d'un vecteur unitaire parallèle au grand diamètre. Le rapport des diamètres montre que les ellipsoïdes ont une forme allongée puisqu'il varie entre 930 et 4700. Pour les valeurs du nombre d'unités de transfert $N_x = 2$ ou $N_x = 3$, leur grand axe est pratiquement situé dans le plan (P_x, P_y), ce qui indique que le modèle est beaucoup plus sensible aux variations de N_x et N_y qu'à celles de P_x et P_y. Pour les valeurs de $N_x = 6$ ou $N_x = 9$, cet effet tend à s'atténuer. La plus petite valeur propre renseigne sur l'espacement des surfaces iso-critères quand on se déplace le long du grand diamètre : dans cette direction le critère a pour expression

$$C = C_{min} + \lambda_{min} \quad |\delta X|^2 + \varepsilon \qquad (13)$$

dans laquelle δX est le déplacement par rapport au minimum. Pour un déplacement donné, la valeur du critère est proportionnelle à λ_{min}. Les résultats montrent que les surfaces iso-critères se resserrent autour du minimum, donc que la précision de l'identification augmente, quand les nombres d'unités de transfert croissent et quand les nombres de PECLET décroissent.

IX - CONCLUSIONS SUR LA SENSIBILITE DES PARAMETRES DU MODELE.-

L'étude de la sensibilité des paramètres du modèle de MIYAUCHI montre que celle-ci dépend du point nominal considéré, c'est-à-dire de la valeur des paramètres. Dans le domaine étudié ici, qui correspond aux divers points de fonctionnement de la colonne utilisée pour les mesures des profils de concentration, le modèle est plus sensible aux variations des nombres d'unités de transfert qu'à celles des nombres de PECLET ; par ailleurs, plus les premiers augmentent et les seconds diminuent, et plus grande est

la sensibilité. Quand les hypothèses nécessaires à l'élaboration du modèle ne sont pas vérifiées, la procédure d'identification tend à pallier les écarts en jouant, suivant les cas, soit sur les nombres d'unitésde transfert, soit sur les nombres de PECLET, ou encore sur les deux groupes simultanément. Plus la sensibilité d'un paramètre est faible et plus grande est sa variation pour obtenir une correction ; en conséquence il est nécessaire que les diverses hypothèses soient très bien vérifiées pour que l'on puisse accorder une signification précise aux paramètres peu sensibles que sont les nombres de PECLET du modèle de MIYAUCHI. Les différents tableaux présentés dans ce chapitre permettent d'estimer ce que l'on peut considérer comme une bonne vérification des hypothèses.

o

o o

- C H A P I T R E VIII -

EXPLOITATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

— 0 —

I - IDENTIFICATION AVEC LE MODELE DE MIYAUCHI.-

Compte tenu de ce qui a été dit dans le chapitre précédent sur l'influence d'une erreur sur le facteur d'extraction, quatre paramètres ont été identifiés au cours du traitement des profils expérimentaux : le facteur d'extraction, le nombre d'unités de transfert, et les deux nombres de PECLET. Le modèle utilisé est celui de MIYAUCHI avec un coefficient de partage $m = 0,275$, et la méthode d'optimisation est celle de GAUSS -NEWTON. L'expression du critère minimisé est la suivante :

$$C(\underline{a}) = \sum_{i=1}^{N} \left(\frac{x_i - x(z_i,\underline{a})}{x_e}\right)^2 + \frac{1}{m^2} \left(\frac{y_i - y(z_i,\underline{a})}{x_e}\right)^2 \qquad (14)$$

Les valeurs de x_i et y_i correspondent aux onze résultats expérimentaux connus sur chaque phase, et les $x(z_i,\underline{a})$ et $y(z_i,\underline{a})$ sont les valeurs calculées par le modèle pour un ensemble de paramètres $\underline{a}$. La division par x_e est destinée à ramener à 1 la concentration d'entrée de la phase continue.

Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 19, les conditions expérimentales dans lesquelles les essais ont été réalisés étant indiquées dans le tableau 11. Les essais omis dans ce tableau sont ceux pour lesquels la méthode d'optimisation n'a pas convergé vers un minimum. Les figures 18 et 19 donnent deux exemples de courbes opératoires expérimentales qui sont dans ce groupe. Elles présentent une double courbure a priori étonnante et un saut de concentration important à l'entrée de la phase dispersée y. La figure 20 montre une courbe opératoire théorique et les points expérimentaux qui ont servi à la calculer ; elle est caractéristique de l'ensemble des résultats par la progression régulière des écarts entre les points expérimentaux et théoriques tout au long de la courbe.

Sur les seize cas traités, il y en a six pour lesquels le facteur d'extraction s'écarte de plus de 5 % de la valeur fixée expérimentalement par le rapport des débits. Si l'on compare la valeur identifiée à celle obtenue par un bilan massique :

$$F^* = m \frac{x_e - x_s}{y_s - y_e} \qquad (15)$$

les concentrations considérées ici étant celles mesurées expérimentalement, on constate un écart plus faible, qui pourtant dépasse encore 5 % dans trois cas. Cette difficulté à retrouver le facteur d'extraction F^* est liée à celle rencontrée pour faire coïncider les points théoriques et expérimentaux aux extrémités de la courbe opératoire.

Il est possible de comparer les nombres de PECLET identifiés avec des estimations obtenues à partir des sauts de concentration à l'entrée de chaque phase. Si les conditions de DANCKWERTS sont vérifiées, les sauts de concentration aux entrées sont donnés par les relations

$$x_e - x(0) = -\frac{1}{P_x} \frac{dx}{dz} \tag{16}$$

$$y(1) - y_e = -\frac{1}{P_y} \frac{dy}{dz} \tag{17}$$

En approchant la pente du profil de concentration à l'entrée de chaque phase par une différence finie faisant intervenir les mesures en deux points, les nombres de PECLET sont estimés par les deux relations

$$\tilde{P}_x = \frac{1}{\Delta z} \frac{x(\Delta z) - x(0)}{x(0) - x_e} \tag{18}$$

$$\tilde{P}_y = \frac{1}{\Delta z} \frac{y(N\,\Delta z) - y[(N-1)\,\Delta z]}{y_e - y(N\,\Delta z)} \tag{19}$$

L'écart de concentration entre deux points voisins est faible, aussi cette estimation est très sensible aux erreurs de mesure ; toutefois les résultats obtenus suffisent pour donner une approximation du nombre de PECLET correspondant au saut de concentration à l'entrée de chaque phase. Un autre terme de comparaison est constitué par les résultats des expériences de réponse à une impulsion de traceur menées par A. BORRELL et rapportées dans son mémoire de thèse. Le tableau 20 rassemble les trois valeurs des nombres de PECLET obtenues par identification sur les profils (P_x et P_y), par étude du saut de concentration à l'entrée ($\tilde{P}_x$ et $\tilde{P}_y$), et par traitement des réponses à une injection de traceur (P^*_x et P^*_y).

Dans ce tableau on remarque la grande dispersion des différentes estimations. Pour la phase continue, le saut de concentration à l'entrée indique un nombre de PECLET environ dix fois plus petit que celui fourni par injection de traceur. La valeur obtenue à partir des profils est généralement comprise entre les deux premières. Elle tend à se rapprocher de la valeur donnée par le saut de concentration pour les facteurs d'extraction élevés (essais n° 16 à 20), ce qui est en accord avec les résultats de l'étude de sensibilité du modèle (chapitre précédent). Pour la phase dispersée, les essais avec traceur indiquent un écoulement pratiquement du type piston avec des nombres de PECLET supérieurs à 60. Ces résultats sont en désaccord avec les valeurs indiquées par le saut de concentration à l'entrée. Les valeurs obtenues par identification des profils sont voisines de celles données par le saut de concentration ; ce n'est que pour les facteurs d'extraction élevés qu'elles s'en écartent notablement : ces cas correspondent à un faible saut de concentration à l'entrée de la phase dispersée, comme le laissait prévoir l'étude de la sensibilité du modèle.

Cet ensemble de résultats amène à mettre en cause la validité du modèle de MIYAUCHI, en particulier en ce qui concerne la description des phénomènes intervenant aux extrémités de la colonne.

Il est intéressant de noter que l'étude des profils de concentration par identification paramétrique montre des désaccords systématiques aux extrémités et une progression régulière des écarts entre les points expérimentaux et ceux du modèle, ce qui indique que des erreurs de mesure aléatoires ne sont pas seules en cause. Toutefois les divergences n'apparaissent nettement que lorsque les résultats de l'optimisation, qui correspondent à un traitement global des profils, sont comparés à ceux fournis par l'étude locale aux extrémités (saut de concentration) puis à ceux obtenus par une méthode différente (injection d'un traceur). Ceci met en évidence les dangers d'une confiance trop grande dans les méthodes globales d'identification.

II - LES EFFETS D'EXTREMITE.-

La comparaison des nombres de PECLET obtenus à partir des sauts de concentration, à ceux donnés par identification sur les profils indique la présence d'effets d'extrémités qui ne sont pas pris en compte par le modèle. Il est possible de construire d'autres modèles dans lesquels la description des phénomènes d'extrémités est différente de celle de la partie centrale de la colonne ; cela augmente le nombre des paramètres à identifier et donne plus de souplesse au modèle qui s'approche mieux des résultats expérimentaux. Il est toutefois très difficile de déterminer si le meilleur accord ainsi obtenu est dû au fait que le modèle est plus proche de la réalité physique, ou si cela résulte seulement de sa plus grande souplesse.

Une tentative a été faite dans la direction opposée, en intégrant le modèle avec, comme conditions aux limites, les valeurs des concentrations mesurées aux extrémités de l'appareil $x(0^+)$, $x(1^-)$, $y(0^+)$ et $y(1^-)$, ce qui oblige les profils théoriques à coïncider avec les profils expérimentaux aux deux extrémités ; le modèle est alors utilisé pour décrire uniquement le comportement de la partie centrale de la colonne. Une identification portant sur les paramètres P_x, P_y, N_x et N_y s'est heurtée à un échec complet : la méthode d'optimisation divergeait en donnant aux nombres de PECLET des valeurs aberrantes. Une étude plus précise a montré que lorsque les extrémités d'un profil de concentration sont fixées, le nombre d'unités de transfert et le nombre de PECLET de la phase considérée jouent des rôles similaires dans la détermination de la forme de ce profil ; il est toutefois beaucoup plus sensible à une variation du premier que du second. Une explication de cette similitude des rôles est que l'un fait intervenir le débit de la phase et l'autre le rapport du débit au coefficient de diffusion : tous deux influent sur le profil en modifiant la vitesse de transport du soluté. Ceci se traduit par l'existence d'une vallée étroite dans les plans (P_x, N_x) et (P_y, N_y), au fond de laquelle un grand nombre de points donnent des profils très voisins ; en conséquence il n'y a pas assez d'information pour identifier simultanément les deux paramètres. Ce résultat met en évidence le rôle joué par les conditions aux limites dans l'identification des nombres de PECLET ; il confirme les conclusions de l'étude de sensibilité du modèle du chapitre précédent.

Une deuxième tentative, aussi infructueuse, a été menée en attribuant à la phase dispersée un écoulement de type piston, en accord avec les résultats des réponses à une injection de traceur. Une seule condition aux limites, la concentration mesurée à l'entrée à l'intérieur de la colonne, $y(1^-)$, était utilisée pour la phase dispersée, les concentrations expérimentales aux deux extrémités, $x(0^+)$ et $x(1^-)$, étant encore utilisées pour la phase continue. Il a de nouveau été impossible de fixer la valeur du nombre P_x. Une tentative d'optimisation à deux niveaux, dans laquelle N_x et N_y étaient identifiés pour une valeur fixée de P_x, ce dernier étant modifié entre deux identifications suivant l'algorithme du nombre d'or, a confirmé l'existence d'une vallée étroite à fond très plat dans le plan (P_x, N_x), donc le manque d'information pour identifier en même temps les deux paramètres.

Il existe une autre possibilité pour intégrer le modèle de MYAUCHI sans utiliser les conditions aux limites de DANCKWERTS. Un bilan sur chaque extrémité de la colonne conduit aux deux relations

$$x_e - x(0) + \frac{1}{P_x}\frac{dx}{dz}(0) + \frac{D_y}{D_x}\left[y(0) - y_s + \frac{1}{P_y}\frac{dy}{dz}(0)\right] = 0 \qquad (20)$$

$$y_e - y(1) - \frac{1}{P_y}\frac{dy}{dz}(0) + \frac{D_x}{D_y}\left[x(1) - x_s - \frac{1}{P_x}\frac{dx}{dz}(1)\right] = 0 \qquad (21)$$

dans lesquelles les abscisses $z = 0$ et $z = 1$ sont celles des extrémités de la partie centrale de la colonne, et x_s et y_s les concentrations de chaque phase à la sortie. Ces deux relations ne présument aucunement des échanges qui peuvent se produire entre les phases au-delà des abscisses 0 et 1. Disposant, avec ces deux relations, de deux conditions aux limites, il suffit d'en fixer deux autres, par exemple deux concentrations expérimentales prises n'importe où dans la colonne, pour intégrer le modèle. Malgré l'intérêt de cette direction de travail, elle a été abandonnée car des résultats obtenus au même moment et exposés dans les paragraphes suivants ont conduit à mettre en cause plusieurs hypothèses du modèle de MIYAUCHI.

III - ETUDE LOCALE DES PROFILS.-

Les traitements des résultats expérimentaux mis en oeuvre jusqu'à présent ont eu pour but de caractériser le fonctionnement de la colonne par des paramètres qui représentent l'effet moyen sur toute la colonne des mécanismes d'échange et de mélange longitudinal. Ces paramètres ne sont significatifs que dans la mesure où les hypothèses d'uniformité des phénomènes le long de la colonne sont vérifiées. Il est donc intéressant de déterminer la validité de cette hypothèse en estimant des valeurs locales des paramètres. Une première tentative en ce sens a déjà été faite lorsque les nombres de PECLET ont été estimés à partir des sauts de concentration aux entrées.

III-1 - VALEURS LOCALES DE N_y.-

En supposant que l'écoulement de la phase dispersée est du type piston, et que le saut de concentration à l'entrée de cette phase est dû uniquement à un échange important au moment de la formation des gouttes, l'équation correspondant à cette phase se réduit à

$$\frac{dy}{dz} + N_y (y^* - y) = 0 \qquad (22)$$

Cette relation permet d'estimer une valeur locale du nombre d'unités de transfert rapportée à la phase dispersée, N_y, à partir de deux couples voisins de concentrations expérimentales. Soient (x_i, y_i) et (x_{i+1}, y_{i+1}) ces deux couples, il est possible d'approcher la dérivée de y et la différence de potentiel d'échange par les deux expressions

$$\frac{dy}{dz} \simeq \frac{y_{i+1} - y_i}{\Delta z} \quad \text{et } y^* - y \simeq f\left[\frac{x_{i+1} + x_i}{2}\right] - \frac{y_{i+1} + y_i}{2} \qquad (23)$$

et en déduire une valeur moyenne de N_y sur le segment (i, i+1).

$$N_y \simeq \frac{y_{i+1} - y_i}{\Delta z} \cdot \frac{1}{\frac{y_{i+1} + y_i}{2} - f\left[\frac{x_{i+1} + x_i}{2}\right]} \qquad (24)$$

Malgré la grande sensibilité d'une telle méthode aux erreurs expérimentales, les résultats varient de manière à peu près régulière le long de la colonne comme le montrent les figures 21, 22, 23, 24. Ces figures montrent une variation importante du nombre d'unités de transfert, donc du produit $K_x a$ le long de la colonne, allant souvent du simple au double. Si l'on se rapporte aux résultats des mesures de sensibilité du modèle, où une variation de seulement 20 % sur le produit $K_x a$ produisait des erreurs sur les nombres de PECLET identifiés pouvant atteindre 40 %, on est conduit à mettre en doute la valeur des résultats acquis par identification globale. Enfin le sens et l'amplitude des variations de N_y sont mal corrélés avec les changements de facteur d'extraction ou de vitesse de rotation. Ces résultats sont à rapprocher de ceux obtenus par THOMAS et WENG[41] avec une colonne à agitateur oscillant : les variations qu'ils observent sont en effet d'importance comparable.

Des résultats très voisins ont été retrouvés en soumettant les profils de concentration à une identification globale à l'aide d'un modèle dans lequel

- l'écoulement de la phase dispersée est du type piston

- le produit $K_x a$ varie linéairement le long de la colonne suivant la relation

$$K_x a = \overline{K_x a} \; (1 + \gamma \, (z - 0{,}5)) \qquad (25)$$

- les conditions aux limites sont constituées par les concentrations expérimentales aux extrémités. Pour éviter les difficultés d'identification du nombre de PECLET, Px, les valeurs déterminées à partir des essais de réponse à une injection de traceur ont été introduites comme données dans le modèle.

Les paramètres identifiés sont le nombre moyen d'unités de transfert sur chaque phase, $\overline{N_x}$ et $\overline{N_y}$ et le coefficient γ dont la variation est limitée à l'intervalle $[-2{,}0, +2{,}0]$. Les résultats obtenus figurent dans le tableau 21 et la variation de N_y est représentée par les droites portées sur les figures 21 à 24.

Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus par estimation locale, ce qui justifie a postériori les approximations faites. Dans les cas où la variation de N_y n'est pas linéaire, cette méthode indique encore une tendance générale d'évolution.

II-2 - VALEURS LOCALES DE P_x.-

En conservant l'hypothèse d'un écoulement piston de la phase dispersée, un bilan matière sur une moitié de la colonne conduit à la relation

$$x_e - x(z) + \frac{1}{P_x} \frac{dx}{dz}(z) + \frac{D_y}{D_x}\left[y(z) - y_s\right] = 0 \qquad (26)$$

qui permet une estimation locale de la valeur du nombre de PECLET à partir d'un nombre limité de mesures de concentration. Ce calcul a été fait en approchant la dérivée de x par l'expression

$$\frac{dx}{dz} \simeq \frac{x_{i+1} - x_{i-1}}{2\,\Delta z} \qquad (27)$$

et en estimant le rapport des débits à partir du bilan matière global. Les résultats obtenus apparaissent sur les figures 25 à 28.

Dans la plupart des essais les valeurs des nombres de PECLET calculées à partir de la relation (26) varient à peu près régulièrement le long de la colonne. Les profils de P_x ont des allures variées sans qu'il soit possible d'établir des corrélations précises avec les conditions opératoires correspondantes. Dans la majorité des cas l'importance de la variation de P_x le long de la colonne conduit à mettre en cause l'hypothèse d'un mélange longitudinal constant. Enfin ces profils sont en bon accord avec le nombre de PECLET estimé à partir du saut de concentration comme le montrent les points portés sur les figures à l'abscisse z = 0.

Un calcul semblable à celui-ci a été mené en introduisant dans le bilan un terme en $\frac{1}{P_y} \frac{dy}{dz}$ pour traduire le mélange longitudinal de la phase dispersée ; la valeur de P_y utilisée étant celle obtenue par la méthode du traceur. Les résultats donnent à P_x des valeurs légèrement plus fortes, en

gardant la même allure de variation le long de la colonne. Les écarts les plus sensibles correspondent aux cas où le nombre P_x calculé est élevé, P_y étant faible (essais 10, 19 et 20). Ces calculs n'introduisent pas d'éléments nouveaux, ce qui justifie l'hypothèse d'un écoulement piston de la phase dispersée.

IV - CONCLUSIONS.-

Les calculs des valeurs locales du nombre d'unités de transfert et du nombre de PECLET indiquent que l'hypothèse d'une uniformité des phénomènes le long de la colonne n'est pas vérifiée. Bien qu'aucune mesure locale de la taille des gouttes ou de la valeur de la retenue n'ait été effectuée, l'observation du comportement de la phase dispersée suggérait déjà cette absence d'uniformité. Dans ces conditions une analyse précise du comportement de la colonne à disques rotatifs ne peut pas être menée avec un modèle caractérisant chaque phénomène par une valeur moyenne le long de l'appareil. Il serait souhaitable d'entreprendre une étude plus détaillée de l'écoulement de la phase dispersée pour déterminer à chaque niveau la valeur de la retenue, la distribution de la taille des gouttes et celle des vitesses. Les méthodes de traceur pourraient apporter une partie de l'information nécessaire à une telle recherche.

Un deuxième ensemble de conclusions résulte de la comparaison des informations obtenues à partir des profils de concentration d'une part et des réponses à des injections de traceur d'autre part.

En ce qui concerne la phase dispersée, la distribution des temps de séjour a été interprétée par un modèle faisant intervenir un mélange longitudinal. Compte tenu du fait que l'écoulement ainsi caractérisé est pratiquement du type piston, cette hypothèse ne porte pas à conséquence ; toutefois l'observation du comportement des gouttes suggèrerait plutôt un modèle faisant intervenir la distribution des vitesses. Quoi qu'il en soit ces résultats n'expliquent pas le saut de concentration à l'entrée de la phase dispersée. En accord avec d'autres auteurs[55], il semble que celui-ci doive être attribué à un échange important au moment de la formation de la goutte plutôt qu'à un mélange longitudinal.

Pour la phase continue, les nombres de PECLET obtenus à partir des réponses dynamiques sont nettement plus élevés que ceux obtenus à partir des profils de concentration : les premièrs sont de deux à cinq fois plus grands que les seconds. Le premier groupe de mesuresne faisait pas intervenir de phénomène d'échange et l'on peut considérer que la présence d'un soluté modifie les conditions d'écoulement dans la colonne ; il paraît toutefois douteux qu'il puisse produire un effet aussi important que celui enregistré ici. L'étude des valeurs locales de P_x ne fait intervenir aucun modèle pour décrire l'échange entre les phases, mais uniquement des modèles d'écoulement ; de la même manière l'exploitation des réponses à une injection de traceur ne fait intervenir que des modèles d'écoulement. Dans ces conditions la divergence entre les deux groupes de résultats conduit à supposer soit des erreurs systématiques de mesure des profils de concentration, soit l'inadéquation du modèle d'écoulement. Les résultats d'une recherche actuellement en cours, sur la même colonne, et avec une technique de prélèvement différente, confirmant la validité des mesures effectuées par A. BORRELL, il semble que la première hypothèse doive être rejetée au profit de la seconde.

Cette recherche n'a pas permis de déterminer quel type de modèle il faudrait utiliser ; toutefois, en rapprochant cette conclusion de celles obtenues à propos de la phase dispersée, on constate la nécessité d'une étude plus approfondie des phénomènes hydrodynamiques dans cette colonne à disques rotatifs. Cette remise en cause des modèles d'écoulement ne doit pas faire oublier qu'il peut également exister des problèmes à résoudre concernant le mécanisme d'échange ; le saut de concentration à l'entrée de la phase dispersée étant un indice d'une possible défaillance du modèle utilisé dans cette étude.

o

o o

C O N C L U S I O N S

— 0 —

CONCLUSIONS

Les différentes techniques d'analyse présentées dans ce mémoire ont permis d'appréhender plusieurs aspects du fonctionnement de la colonne d'extraction à disques rotatifs. Pour conclure, nous allons rappeler les différents résultats acquis dans ce domaine, et tenter de les interpréter.

Le traitement des mesures de temps de séjour nous a conduit à préciser la nature de l'information apportée par ce genre d'expérience. Nous avons supposé l'existence d'un appareil dans lequel un mécanisme de diffusion parfait provoque un mélange longitudinal, puis nous avons montré que la réponse impulsionnelle de cet appareil ne contient aucun renseignement sur les conditions existant aux extrémités de la zone d'étude de l'écoulement. Pour interpréter ce type de résultats expérimentaux, il faut cependant traduire par des relations mathématiques les phénomènes aux frontières ; et les valeurs du temps de passage et du nombre de PECLET identifiés dépendent du choix de ces conditions. Dans le domaine étudié ($Pe \geqslant 10$), et en supposant le cas le plus défavorable, l'erreur relative sur le temps de passage introduite par une fausse hypothèse est $2/Pe$; l'erreur absolue sur le nombre de PECLET étant d'une unité. En l'absence d'information provenant de la réponse impulsionnelle, il est possible de se guider sur la géométrie de l'appareil et sur la nature des écoulements aux frontières de la zone étudiée pour choisir les conditions aux limites. Quand le domaine est situé assez loin des extrémités de l'appareil, le choix des conditions "ouvert-ouvert" ne soulève pas de difficultés ; ce n'est que lorsqu'une ~~est~~ des frontières coïncide avec une extrémité réelle de l'appareil que des problèmes apparaissent. La pratique est d'utiliser les relations "fermé-ouvert" (ou "fermé-fermé" si les deux limites sont celles de l'appareil), ce qui n'est pas en soi criticable car ces relations proviennent d'un bilan ; le point litigieux est que l'on doit supposer une homogénéité du phénomène de diffusion tout au long de l'écoulement, y compris au voisinage immédiat des frontières. Ceci constitue une approximation dans la description du phénomène physique et rend incertaine la signification des valeurs du temps de passage et du nombre de PECLET. Dans ce cas le choix des conditions aux limites perd un peu de son importance.

Une deuxième étude nous a indiqué que la réponse impulsionnelle permet de distinguer la diffusion du mécanisme de mélange de type "bacs en cascade" ; l'écart étant d'autant plus net que le mélange longitudinal est plus important (ou le nombre de bacs plus réduit). Dans la mesure où l'on considère là deux modèles mathématiques, alors qu'un système physique comme la colonne à disques rotatifs n'est jamais exactement réductible à l'un ou à l'autre, ce résultat reste théorique. Il renseigne néanmoins sur l'information contenue dans une réponse impulsionnelle.

Pour interpréter les réponses expérimentales à une injection de traceur dans la phase continue de la colonne, plusieurs types de modèles ont été utilisés. Nous avons montré que le modèle piston diffusionnel "fermé-ouvert" rend bien compte des résultats obtenus, mais qu'il laisse subsister des écarts systématiques que nous avons cherché à expliquer : ceux-ci sont localisés aux points de courbure maximum de la réponse, ce qui se traduit dans le domaine fréquentiel par un écart aux fréquences élevées. Nous avons modifié le modèle piston diffusionnel en lui adjoignant un élément de retard pur qui correspond à l'existence d'une zone en écoulement piston, et ajoute un troisième paramètre au modèle. Ceci permet de diminuer l'écart entre les réponses théoriques et expérimentales sans que l'amélioration soit très importante. Le point intéressant apporté par ce modèle est de donner des constantes de retard négatives, ce qui peut signifier soit que l'impulsion est déjà déformée en entrant dans la colonne, soit qu'il existe dans l'appareil une zone où le mélange longitudinal est plus important. Notons à ce propos que la méthode d'identification que nous avons mise au point permet de travailler avec deux points de détection et donc de lever les ambiguités sur la forme réelle de l'impulsion utilisée.

Ayant ensuite éliminé le modèle à bacs en cascade qui n'apporte aucune amélioration, nous avons utilisé le modèle à bacs avec courant de retour. Possédant trois paramètres et englobant comme cas particuliers le modèle à bacs en cascade et le modèle piston diffusionnel, celui-ci semblait particulièrement adapté à la description de la série de compartiments formée dans la colonne par les chicanes. Nous avons constaté une diminution des écarts entre les réponses expérimentales et théoriques, toutefois nous pensons que ce résultat est lié à la souplesse accrue conférée au modèle par le troisième paramètre, et non pas à un caractère de réalisme plus poussé. L'utilisation d'un modèle à quatre paramètres nous a conduit à des conclusions similaires.

Après cette étude nous pouvons dire qu'un modèle à deux paramètres, du type piston-diffusionnel, permet d'exploiter la quasi-totalité de l'information contenue dans les réponses de la colonne à une injection de traceur. D'autres modèles à trois ou quatre paramètres peuvent apporter à la représentation de l'écoulement une légère amélioration, qui est liée à la souplesse supplémentaire que confère un plus grand nombre de paramètres. Les différents mécanismes de mélange mis en oeuvre dans ces modèles donnent, dans le cas présent, des réponses impulsionnelles extrêmement voisines ; il nous faut donc également conclure que les réponses expérimentales ne permettent pas de caractériser le mécanisme qui provoque la dispersion des temps de séjour dans la colonne. Dans ces conditions l'existence d'un mécanisme de diffusion parfait reste une hypothèse ; il semble prudent de considérer le nombre de PECLET, et, à un degré moindre, le temps de passage, comme des grandeurs semi-empiriques permettant de caractériser l'écoulement, sans se prononcer sur la signification physique de ces grandeurs.

La méthode d'identification que nous avons mise au point donne les valeurs du temps de passage avec une grande précision, le nombre de PECLET étant un peu moins bien déterminé. Compte tenu de ce qui vient d'être di' sur la signification physique des paramètres du modèle piston diffusionnel, cette précision peut paraître d'un faible intérêt. Il faut toutefois indiquer que c'est grâce à cet outil qu'il a été possible de montrer les limites de l'information contenue dans une réponse impulsionnelle ; par ailleurs, il est intéressant de pouvoir suivre avec précision les variations des paramètres du modèle car leurs valeurs relatives conservent une signification ; enfin, cette méthode rend actuellement de grands services à l'Institut du Génie Chimique, dans le cadre d'études où la validité des modèles n'est pas mise en doute.

L'étude des profils de concentration déterminés expérimentalement par des mesures dans chaque phase à l'intérieur de la colonne s'est révélée plus compliquée que celle des réponses impulsionnelles car trois phénomènes distincts sont alors en présence : les écoulements de chaque phase et le transfert de soluté. Pour cette raison il nous a paru nécessaire de reprendre la démarche précédente avec encore plus de rigueur. La signification des nombres de PECLET et du nombre d'unités de transfert identifiés à partir des profils de concentration dépend à la fois de la qualité des mesures et de l'aptitude du modèle à traduire précisément le phénomène physique. Cette deuxième cause d'erreur est bien connue de la majorité des chercheurs, mais son étude

systématique se heurte à des difficultés. Bien souvent les hypothèses faites lors de l'établissement d'un modèle résultent d'un compromis entre la nécessité de disposer d'un ensemble de relations mathématiques utilisables (par exemple, des équations différentielles facilement intégrables), et le souci de traduire fidèlement le phénomène physique. C'est notamment le cas quand on utilise le modèle de MIYAUCHI pour décrire le fonctionnement d'une colonne à disques rotatifs, en conservant les hypothèses de constance tout au long de la colonne des phénomènes d'échange et de mélange longitudinal. En calculant des profils de concentration à partir de modèles s'écartant légèrement des hypothèses classiques, et en comparant ceux-ci aux résultats donnés par le modèle de MIYAUCHI, nous avons montré que l'identification compense les écarts entre modèles en jouant avant tout sur les nombres de PECLET. Dans ces conditions, il n'est pas possible de supposer a priori que les hypothèses simplificatrices de MIYAUCHI sont vérifiées, et d'espérer que, malgré les écarts, les valeurs des nombres de PECLET identifiés traduiront un effet moyen du mélange longitudinal dans la colonne ; en cas d'écart, les nombres de PECLET traduisent à la fois le mélange longitudinal et l'erreur d'hypothèse. Le nombre d'unités de transfert est généralement moins affecté et peut être considéré comme représentatif de l'échange moyen dans la colonne.

Un point intéressant de cette étude a été de montrer que pour certains régimes d'écoulement, la valeur du nombre de PECLET identifié est exclusivement conditionnée par le saut de concentration à l'entrée de la phase correspondante. En conséquence, si un mécanisme que le modèle ne traduit pas modifie le saut de concentration à l'entrée d'une phase, le nombre de PECLET correspondant peut caractériser non pas le mélange longitudinal mais le phénomène d'entrée. Ces conclusions sont seulement qualitatives car l'effet d'une erreur d'hypothèse dépend à la fois de la nature de l'hypothèse en cause, du nombre de paramètres identifiés, de la disposition des points expérimentaux disponibles et du point de fonctionnement de l'appareil. La présenté étude s'est limitée au domaine dans lequel des résultats expérimentaux ont été obtenus ; nous espérons pouvoir prochainement généraliser les conclusions que nous avons obtenues.

Pour étudier l'influence des erreurs d'hypothèses nous avons dû intégrer numériquement plusieurs modèles continus non-linéaires d'extraction, entreprise condidérée comme irréalisable par les chercheurs travaillant dans ce domaine. Cette fausse idée résulte des travaux de HARTLAND et MECKLENBURGH[26] qui, ayant abordé le problème avec une méthode numérique mal adaptée, ont

hâtivement généralisé les conclusions tirées de leur échec. Ce point a beaucoup ralenti notre étude car il nous a conduit à essayer d'emblée des algorithmes d'intégration très compliqués, avant d'arriver à la méthode simple et classique qui est présentée au chapitre IV.

Nous avons ensuite montré que les profils de concentration expérimentaux sont mal représentés par le modèle de MIYAUCHI : il y a un désaccord aux extrémités de la colonne et le rapport des débits identifié est assez éloigné de celui calculé à partir d'un bilan. La comparaison entre les nombres de PECLET identifiés et ceux calculés à partir des sauts de concentration aux entrées n'a de sens que pour les points de fonctionnement où ces deux déterminations sont indépendantes : nous constatons alors une divergence marquée. Pour la phase continue, le nombre de PECLET identifié tend à se rapprocher de celui déterminé à partir des réponses impulsionnelles. En ce qui concerne la phase dispersée, les méthodes de traceur indiquent un écoulement pratiquement de type piston ; le saut de concentration à l'entrée doit donc être expliqué par un mécanisme particulier, tel qu'un mélange en retour localisé autour de l'entrée, ou un phénomène d'échange d'une intensité accrue en ce point.

Décrire l'écoulement de la phase dispersée par un modèle piston diffusionnel n'est probablement pas réaliste ; il n'est toutefois pas nécessaire de faire appel à un modèle pour remarquer la faible dispersion des temps de séjour sur cet écoulement et en conclure qu'il est pratiquement piston. En utilisant cette hypothèse nous avons estimé l'allure des variations du nombre d'unités de transfert le long de la colonne, et montré que l'hypothèse de constance du phénomène d'échange est très mal vérifiée. Compte tenu de l'importance de cette hypothèse dans la détermination des nombres de PECLET, nous pouvons conclure que l'identification de ces grandeurs, à partir des profils de concentration dans la colonne à disques rotatifs, donne des résultats dénués de signification physique. Par contre les variations du nombre d'unités de transfert s'ordonnent à peu près autour de la valeur identifiée avec le modèle de MIYAUCHI ; ce paramètre représente donc un phénomène d'échange moyen équivalent.

En conservant l'hypothèse d'un écoulement piston de la phase dispersée, nous avons établi des profils du nombre de PECLET de la phase continue le long de la colonne. L'allure des variations est régulière, elle contredit l'hypothèse d'un mélange diffusionnel constant, mais est en accord avec la valeur déduite du saut de concentration à l'entrée ; ces raisons nous incitent à croire que

les profils ainsi obtenus traduisent un phénomène réel de mélange longitudinal. Par ailleurs, ils sont généralement très éloignés des valeurs du nombre de PECLET obtenues à partir des réponses impulsionnelles. Ce dernier point est important, car, dans les deux cas, ces résultats ne font intervenir que le modèle d'écoulement, sans mettre en jeu le phénomène d'échange. Ce comportement du modèle, qui donne des résultats variables en fonction du type de mesure effectuée sur le système physique, indique que le mécanisme imaginé lors de son établissement ne correspond pas au phénomène physique réel. Avant de tirer une conclusion il faut préciser que celle-ci résulte de mesures effectuées sur une colonne particulière, avec un mélange donné, et dans une certaine plage de fonctionnement. Ces réserves étant faites nous devons conclure de nos résultats que la description de l'écoulement de la phase continue dans la colonne à disques rotatifs n'a pas de signification physique.

Pour terminer nous voudrions situer notre étude par rapport à certains problèmes pratiques qui sont à l'origine de la recherche dans le domaine de l'extraction. A un premier niveau nous trouvons une demande pour un modèle mathématique simple et comportant peu de paramètres, qui permette le calcul prévisionnel des colonnes d'extraction. La signification physique des paramètres n'est pas un impératif car on peut envisager d'établir des corrélations empiriques pour interpoler entre plusieurs installations déjà construites. La seule exigence est que les paramètres du modèle soient caractéristiques du fonctionnement de l'appareil. Dans le cas de la colonne à disques rotatifs, il peut être possible d'utiliser le modèle classique de MIYAUCHI ; il faudrait toutefois régler au préalable le problème du choix de la méthode de mesure du nombre de PECLET. Le seul résultat qui nous paraisse significatif est celui donné par les profils de PECLET le long de la colonne, et il n'est pas facile à introduire directement dans le modèle. A un deuxième niveau on cherche à comprendre le fonctionnement des installations pour éventuellement les améliorer. L'exigence d'un modèle ayant une signification physique est là beaucoup plus forte et le modèle de MIYAUCHI ne nous paraît pas convenir dans ce cas.

-:-:-:-:-:-:-

BIBLIOGRAPHIE

1 - RICHALET A., RHAULT A. et POULIQUEN R. - Identification des processus par la méthode du modèle ; Gordon & Breach (1971), Paris.

2 - WILDE D.J. - Méthodes de recherche d'un optimum ; Dunod (1966), Paris.

3 - KUESTER J.L. et MIZE J.H. - Optimization techniques with Fortran ; Mc Graw Hill (1973), New-York .

4 - BOUDAREL R., DELMAS J. et GUICHET P. - Commande optimale des processus, tome 2 ; Dunod (1968), Paris.

5 - CARNAHAN B., LUTHER H.A., WILKES J.O. - Applied numerical methods ; John Wiley (1969), New-York.

6 - LINNIK Y.V. - Methode des moindres carrés, Eléments de la théorie, du traitement statistique des observations , Dunod (1963), Paris.

7 - LEVENSPIEL O. et SMITH W.K. - Chem. engng. Sci., 6, 227 (1957).

8 - VAN DER LAAN E. Th. - Chem. Engng. Sci., 7, 187 (1957).

9 - ARIS R. - Chem. Engng. Sci., 9, 266 (1959).

10 - BISCHOFF K.B. - Chem. Engng. Sci., 12, 69 (1960).

11 - BISCHOFF D.B. et LEVENSPIEL O. - Chem. Engng Sci., 1962, 17, 245.

12 - ANDERSON A.S. et WHITE E.T. - Chem. Engng. Sci., 26, 1203 (1971).

13 - PARK C.M. - Ph. D. Dissertation, Univ. of Maryland (1969)

14 - BELL R.L. - Ph. D. Dissertation, Univ. of Washington (1964).

15 - COOLEY J.W. et TUCKEY J.W. - Math. Comp., 19, 297 (1965).

16 - IEEE Trans. Audio and Electroacoustics, AU-15 (1967).

17 - IEEE Trans. Audio and Electroacoustics, AU-17 (1969).

18 - COOLEY J.W., LEWIS P.A.W. et WELCH P.D. ; I.B.M. Research Paper RC 1743 (1967).

19 - MURRILL P.W., PIKE R.W. et SMITH C.L. - Chemical Engineering, 25 Août 1969.

20 - WEINSTEIN C.J. - IEEE Trans., AU-17, 209 (1969).

21 - HOUGEN J.O. et WALSH R.A. - Chem. Engng. Prog., 57 (3), 69 (1961).

22 - POLLOCK G.C. et JOHNSON A.I. - Can. J. Chem. Engng., 47, 565 (1969).

23 - HAYS J.R., CLEMENTS W.C. Jr., HARRIST T.R. - A.I.Ch.E., J., 13, 374 (1967).

24 - LÁZÁR J. - D.E.S. Université Paul Sabatier, Toulouse (1971).

25 - ROD V. - Br. Chem. Engng., 9, 300 (1964).

26 - MECKLENBURGH J.C. et HARTLAND S. - I. Chem. E. Symposium Series, 26, 115 (1967).

27 - BORRELL-VALLS A. - Thèse de Docteur Ingénieur, Université Paul Sabatier, Toulouse (Juin 1974).

28 - GEANKOPLIS C.J. et HIXSON A.M. - Ind. Engng. Chem., 42, 1141 (1950).

29 - GEANKOPLIS C.J., WELLS P.L. et HAWK E.L. - Ind. Engng. Chem., 43, 1848 (1951).

30 - NEWMAN M.L. - Ind. Engng. Chem., 44, 2457 (1952).

31 - DANCKWERTS P.V. - Chem. Engng. Sci., 2, 1 (1953).

32 - WEHNER J.F. et WILHELM R.H. - Chem. Engng. Sci., 6, 89 (1956).

33 - MIYAUCHI T. - U.S. Atomic Energy Comm. Rept. UCRL 3911 (1957).

34 - Mc MULLEN A.K., MIYAUCHI T., VERMEULEN T. - U.S. Atomic Energy Comm. Rept. Supplément, UCRL 3911 (1958).

35 - SLEICHER C.A., Jr. - A.I.Ch.E. J. 5, 145 (1959).

36 - MIYAUCHI T. et VERMEULEN T. - Ind. Engng. Chem. Fund., 2, 113 (1963).

37 - OLNEY R.B. - A.I.Ch.E. J. 10, 827 (1964).

38 - KAFAROV V.V., VYGON V.G. et GORDEEV L.S. - Int. Chem. Engng., 8, 415 (1968).

39 - LETAN R. et KEHAT E. - A.I.Ch.E. J. 11, 804 (1965).

40 - LETAN R. et KEHAT E. - A.I.Ch.E. J. 14, 398 (1968).

41 - THOMAS W.J. et WENG P.K.J. - J. Appl. Chem., 20, 21 (1970).

42 - HEERTJES P.M. et de NIE L.H. - In Recent Advances in liquid-liquid extraction, p. 367, Pergamon Press (1971), Oxford.

43 - SAWISTOWSKI H. - In Recent Advances in liquid-liquid extraction, p. 293, Pergamon Press (1971), Oxford.

44 - KRAMERS H. et ALBERTA G. - Chem. Engng. Sci., 2, 173 (1953).

45 - GOULD L.A. - Chemical process control : theory and applications ; Addison Wesley (1969), Londres.

46 - KLINKENBERG A. - Ind. Engng. Chem. Fund., 5, 282 (1966).

47 - MIYAUCHI T. et VERMEULEN T. - Ind. Engng. Chem. Fund., 2, 304 (1963).

48 - SLEICHER C.A. - A.I.Ch.E. J., 6, 529 (1960).

49 - HARTLAND S. et MECKLENBURGH J.C. - Chem. Engng. Sci., 21, 1209 (1966).

50 - MISEK T. et ROD V. - In Recent advances in liquid-liquid extraction, p. 197, Pergamon Press (1971), Oxford.

51 - STAINTHORP F.P. et SUDALL N. - Trans. Instn. Chem., Engrs, 42, T. 198 (1964).

52 - VILLERMAUX J. et VAN SWAAIJ W.P.M. - Chem. Engng. Sci., 24, 1097 (1969).

53 - BORRELL-VALLS A. - Thèse de Docteur Ingénieur (Annexes), Université Paul Sabatier, Toulouse (Juin 1974).

54 - ELGIN J.C. et BROWNING F.M. - Trans. A.I.Ch.E., 31, 639 (1935).

55 - INGHAM J. - In Recent Advances in liquid-liquid extraction, p. 237, Pergamon Press (1971), Oxford.

-:-:-:-:-:-:-:-:-

NOMENCLATURE

a	:	surface d'échange par unité de longueur (m^2/m)
A_T	:	section droite de la colonne (m^2)
C	:	concentration (kg/m^3)
D	:	débit volumique (m^3/h)
$\mathcal{D}$	:	coefficient de diffusion (m^2/h)
F	:	facteur d'extraction $F = m\, D_y/D_x$
f	:	fréquence (Hz)
K_x	:	coefficient global d'échange rapporté à la phase x (m/h)
L	:	longueur de la colonne (m)
m	:	coefficient de partage $m = y/x$
N_x, N_y	:	nombre d'unités de transfert rapporté à la phase x, à la phase y
p	:	opérateur de Laplace
P_e, P	:	nombre de PECLET $P = UL/\mathcal{D}$
t	:	temps
U	:	vitesse d'une phase (m/h)
V	:	volume de la colonne (m^3)
x	:	concentration de la phase continue (kg/m^3)
x^*	:	concentration qu'aurait la phase x si elle était en équilibre avec la phase y (kg/m^3)
$X(f)$	:	transformée de FOURIER de $x(t)$
X^*_n	:	n-ième terme de la transformée discrète de FOURIER d'une séquence (x_i)

y : concentration de la phase dispersée (kg/m^3)

z : abscisse sans dimension $z = l/L$ (kg/m^3)

Lettres grecques

ΔT : pas d'échantillonnage, intervalle de temps

Δf : intervalle de fréquence

λ_{min} : plus petite valeur propre d'une matrice

φ : taux de retenue de la phase dispersée

ω : vitesse de rotation des disques (t/mn)
facteur de relaxation

τ : temps de passage $\tau = V/D$ (h)

Indices

e : relatif à l'entrée d'une phase

ex : valeur expérimentale

s : relatif à la sortie d'une phase

th : valeur théorique

x : relatif à la phase continue, x

y : relatif à la phase dispersée, y

-:-:-:-:-:-:-

LISTE DES TABLEAUX

1 - Module de l'erreur $Y(f) - Y^*(f)$ en fonction de la fréquence naturelle du filtre

2 - Profils de concentration (courbe d'équilibre $y = x^2$)

3 - Comparaison des trois formes du modèle piston diffusionnel

4 - Comparaison du modèle NBC aux trois modèles piston-diffusionnel

5 - Conditions expérimentales des mesures de réponse impulsionnelle

6 - Identification à l'aide du modèle piston diffusionnel fermé-ouvert

7 - Influence de la modification du modèle piston diffusionnel

8 - Identification à l'aide du modèle piston diffusionnel avec retard pur

9 - Identification à l'aide du modèle à bacs en cascades

10 - Identification à l'aide du modèle à bacs avec retour

11 - Conditions expérimentales de mesure des profils de concentration

12 - Variation des paramètres liée à une diminution de 5 % du facteur d'extraction

13 - Variation des paramètres liée à une augmentation de 2 % du coefficient de partage

14 - Variation des paramètres liée à une diminution de 10 % du saut de concentration à l'entrée de la phase x

15 - Variation des paramètres liée au remplacement de la relation d'équilibre $y = 0.245\ x + 0.618\ x^2$ par $y = 0.275\ x$

16 - Variation des paramètres liée à une variation du produit $K_x a$

17 - Influence d'une variation dans la retenue de la phase dispersée $\varphi(z) = 0.09\ (1 + 0.55\ z)$

18 - Etude des surfaces isocritères

19 - Résultat de l'identification avec le modèle de MIYAUCHI

20 - Comparaison de trois estimations du nombre de PECLET

21 - Identification avec nombre d'unités de transfert variable $N_x = \bar{N}_x\ (1 + \gamma\ (z - 0.5))$

-:-:-:-:-:-

f_n \ f	0,5 Hz	0,7 Hz	0,9 Hz
10	0,98	1,02	1,08
1	0,22	0,35	0,54
0,5	$0,44 \cdot 10^{-1}$	$0,75 \cdot 10^{-1}$	0,13
0,1	$0,16 \cdot 10^{-2}$	$0,27 \cdot 10^{-2}$	$0,48 \cdot 10^{-2}$
0,05	$0,40 \cdot 10^{-3}$	$0,68 \cdot 10^{-3}$	$0,12 \cdot 10^{-2}$
0,02	$0,64 \cdot 10^{-4}$	$0,11 \cdot 10^{-3}$	$0,19 \cdot 10^{-3}$

TABLEAU n° 1.- Module de l'erreur $Y(f) - Y^*(f)$ en fonction de la fréquence naturelle du filtre.

	z	Entrée Sortie	0.04	0.10	0.20	0.30	0.40	0.50	0.60	0.70	0.80	0.90	0.96	Entrée Sortie
MECKLENBURGH et HARTLAND	x	1.00	0.84	0.81	0.77	0.73	0.69	0.65	0.62	0.58	0.55	0.52	0.51	0.51
	y	0.49	0.49	0.47	0.45	0.41	0.37	0.33	0.29	0.25	0.21	0.17	0.15	0.00
PRESENTE ETUDE	x	1.00	0.82	0.79	0.75	0.71	0.67	0.63	0.60	0.56	0.54	0.51	0.50	0.50
	y	0.50	0.50	0.48	0.45	0.41	0.36	0.32	0.28	0.24	0.20	0.16	0.14	0.00

TABLEAU n° 2.- Profils de concentration (courbe d'équilibre $y = x^2$)

Modèle initial \ Modèle ajusté	FF			OO		
	$C.10^6$	P_e	τ	$C.10^6$	P_e	τ
P_e = 10	6.0	9.3	1.10	17.0	10.4	.92
15	4.9	14.3	1.07	10.0	15.5	.94
20	5.5	19.4	1.05	6.8	20.5	.96
FO 25	1.4	24.4	1.04	11.0	25.5	.96
30	10.0	29.5	1.03	3.4	30.5	.97
35	6.7	34.5	1.03	26.0	35.4	.97
40	1.9	39.5	1.03	32.0	40.5	.98
P_e = 10				39.0	11.2	.84
15				20.0	16.1	.89
20				15.0	21.1	.91
FF 25				8.9	26.1	.93
30				20.0	31.0	.94
35				4.7	36.0	.95
40				3.2	41.1	.95

TABLEAU n° 3. - Comparaison des trois formes du modèle piston diffusionnel

Modèle initial \ Modèle ajusté		NBC		
		$C.10^3$	2 N	τ
	P_e = 10	3.6	12.8	.96
	15	2.7	17.8	.97
	20	2.3	22.8	.98
FF	25	2.0	27.7	.98
	30	1.8	32.7	.98
	35	1.6	37.7	.99
	40	1.5	42.8	.99
	P_e = 10	3.2	12.0	1.05
	15	2.5	17.1	1.03
	20	2.1	22.1	1.03
FO	25	1.8	27.2	1.02
	30	1.7	32.1	1.02
	35	1.5	36.9	1.02
	40	1.4	42.1	1.01
	P_e = 10	2.6	11.7	1.15
	15	2.1	16.6	1.10
	20	1.9	21.7	1.08
OO	25	1.7	26.6	1.06
	30	1.5	31.7	1.05
	35	1.4	36.6	1.04
	40	1.3	41.6	1.04

TABLEAU n° 4.- Comparaison du modèle NBC aux trois modèles piston-diffusionnel

Essai n°	D_x l/h	ω t/mn	Essai n°	D_x l/h	ω t/mn
1	5	500	16	8	500
2		1000	17		1000
3		1500	18		1500
4		2000	19		2000
5		2500	20		2500
6	6	500	21	9	500
7		1000	22		1000
8		1500	23		1500
9		2000	24		2000
10		2500	25		2500
11	6,77	500	26	10	500
12		1000	27		1000
13		1500	28		1500
14		2000	29		2000
15		2500	30		2500

TABLEAU n° 5.- Conditions expérimentales lors des mesures de réponse impulsionnelle

D_x débit de la phase continue (pas de phase dispersée)

ω vitesse de rotation des disques

Essai n°	$C.10^3$	P_e	τ_{mn}	Essai n°	$C.10^3$	P_e	τ_{mn}
1	2.18	53.7	21.0	16	0.90	64.9	12.9
2	1.49	38.9	21.2	17	2.54	49.6	13.2
3	1.01	29.8	20.7	18	2.33	35.5	13.0
4	0.86	22.7	18.5	19	1.94	31.7	12.8
5	0.88	21.7	20.2	20	3.78	29.6	12.6
6	2.23	61.6	17.2	21	0.54	65.2	12.6
7	2.19	42.4	17.4	22	1.15	49.4	12.7
8	1.82	30.0	17.2	23	1.10	39.7	12.9
9	1.94	28.2	16.8	24	0.95	32.7	12.5
10	1.20	22.5	16.6	25	1.15	26.3	12.4
11	1.25	59.2	16.4	26	3.49	73.9	13.2
12	1.35	42.4	16.5	27	2.77	58.3	10.6
13	1.33	33.6	16.3	28	3.00	45.3	10.5
14	1.67	28.1	16.1	29	3.04	37.4	10.5
15	1.40	25.3	15.8	30	3.26	29.7	10.3

TABLEAU n°6 .- Identification à l'aide du modèle piston-diffusionnel fermé-ouvert

ssai n°	$\frac{\Delta C}{C} \cdot 10^2$	α	$\frac{\Delta \tau}{\tau} \cdot 10^2$	ΔP_e	Essai n°	$\frac{\Delta C}{C} \cdot 10^2$	α	$\frac{\Delta \tau}{\tau} \cdot 10^2$	ΔP_e
1	1.1	1.035	1.9	.53	16	-	1.035	-	-
2	2.7	1.058	2.7	.57	17	0.9	1.043	2.1	.54
3	3.9	1.067	3.4	.56	18	1.6	1.058	2.9	.57
4	0.4	0.809	2.6	.22	19	2.2	1.067	3.3	.58
5	0.9	0.330	- 1.5	.02	20	0.1	0.344	- 1.0	.01
6	0.8	1.035	1.7	.53	21	0.1	1.029	1.6	.54
7	1.3	1.043	2.4	.53	22	2.1	1.043	2.1	.55
8	2.1	1.067	3.4	.56	23	2.4	1.058	2.7	.57
9	0.0	0.564	0.5	.02	24	4.2	1.067	3.2	.58
10	4.2	1.091	4.7	.60	25	4.6	1.082	4.0	.60
11	1.5	1.035	1.7	.53	26	0.5	1.029	1.4	.53
12	1.8	1.043	2.4	.55	27	0.8	1.035	1.8	.53
13	3.8	1.058	1.8	.56	28	1.1	1.043	2.2	.54
14	4.2	1.067	3.7	.56	29	1.5	1.058	2.8	.57
15	5.9	1.082	4.2	.59	30	1.8	1.067	3.5	.57

TABLEAU n° 7.- Influence de la modification du modèle piston-diffusionnel

$$\frac{\Delta C}{C} = \frac{C_1 - C_2}{C_1}$$ amélioration du critère

$$\frac{\Delta \tau}{\tau} = \frac{\tau_1 - \tau_2}{\tau_1}$$ diminution du temps de passage

$$\Delta P_e = P_{e_2} - P_{e_1}$$ augmentation du nombre de PECLET

Indices : 1, modèle "fermé-ouvert" ; 2, modèle modifié

Essai n°	$\frac{\Delta C}{C} \cdot 10^2$	P_e	τ	α	Essai n°	$\frac{\Delta C}{C} \cdot 10^2$	P_e	τ	α
1	7.5	79.0	21.0	- .20	16	- 3.3	69.4	12.9	- .03
2	24.4	53.3	21.2	- .16	17	1.6	66.0	13.2	- .15
3	23.8	39.0	20.6	- .13	18	3.1	47.0	13.0	- .14
4	5.1	26.3	18.5	- .07	19	8.7	42.8	12.8	- .15
5	1.8	20.3	20.2	.04	20	- 4.2	25.6	12.6	.06
6	7.2	88.5	17.2	- .19	21	- 1.8	68.2	12.6	- .02
7	6.8	50.8	17.4	- .09	22	14.6	68.3	12.7	- .17
8	5.1	34.3	17.2	- .06	23	8.3	51.8	12.9	- .13
9	3.4	36.0	16.8	- .12	24	19.6	44.5	12.5	- .16
10	19.4	29.0	16.6	- .12	25	11.8	34.4	12.4	- .13
11	10.2	84.1	16.3	- .19	26	0.3	103.2	13.2	- .18
12	4.8	55.7	16.4	- .14	27	0.3	77.8	10,6	- .15
13	25.0	50.1	16.3	- .21	28	0.8	60.7	10.5	- .15
14	29.3	44.2	16.0	- .24	29	1.9	50.5	10.5	- .15
15	27.4	37.4	15.8	- .20	30	0.7	38.7	10.3	- .13

TABLEAU n° 8 .- Identification à l'aide du modèle piston diffusionnel avec retard pur

$\frac{\Delta C}{C} \cdot 10^2$ pourcentage d'amélioration du critère par rapport au modèle sans retard.

Essai n°	$\frac{C_{NBC}}{C_{FO}}$	N	τ mn	Essai n°	$\frac{C_{NBC}}{C_{FO}}$	N	τ mn
1	1.05	27.9	21.2	16	2.33	33.6	13.0
2	0.88	20.5	21.5	17	1.18	25.9	13.4
3	1.24	16.0	21.0	18	1.22	18.8	13.2
4	2.50	12.4	18.9	19	1.16	16.9	13.0
5	3.46	11.9	20.6	20	1.30	15.9	12.8
6	1.05	31.9	17.3	21	3.09	33.7	12.7
7	1.11	22.2	17.6	22	1.16	25.8	12.9
8	1.32	16.1	17.5	23	1.48	20.9	13.1
9	1.51	15.2	17.1	24	1.34	17.4	12.7
10	1.37	12.3	17.0	25	1.51	14.2	12.6
11	1.18	30.7	16.5	26	1.11	38.0	13.3
12	1.40	22.3	16.7	27	1.19	30.2	10.7
13	0.97	17.9	16.6	28	1.17	23.7	10.7
14	0.82	15.1	16.4	29	1.15	19.8	10.6
15	0.97	13.7	16.1	30	1.21	15.9	10.5

TABLEAU n° 9 .- Identification à l'aide du modèle à bacs en cascades

$$\frac{C_{NBC}}{C_{FO}} = \frac{\text{minimum du critère avec modèle à bac en cascade}}{\text{minimum du critère avec modèle piston diffusionnel}}$$

Essai n°	$\frac{\Delta C}{C} \cdot 10^2$	N	δ	τ_{mn}	Essai n°	$\frac{\Delta C}{C} \cdot 10^2$	N	δ	τ
1	9	42.4	.28	21.1	16	33	2317	35.2	12.[illegible]
2	26	26.9	.17	21.4	17	9	51.8	.53	13.[illegible]
3	25	25.2	.32	20.8	18	8	38.6	.57	13.[illegible]
4	10	28.6	.74	18.6	19	15	28.2	.37	12.[illegible]
5	12	2778	127	20.2	20	6	35.8	.69	12.6
6					21	17	1992	30	12.6
7	13	36.7	.35	17.4	22	22	40.4	.30	12.8
8					23	15	40.7	.51	12.9
9	8	31.2	.59	16.8	24	24	28.4	.35	12.6
10	21	20.6	.39	16.7	25	13	26.9	.50	12.4
11	16	50.1	.33	16.4	26	30	73.3	.48	13.2
12	7	45.9	.57	16.5	27	24	54.2	.42	10.7
13	35	25.0	.22	16.5	28	18	45.2	.48	10.6
14	29	19.3	.15	16.3	29	21	35.4	.43	10.5
15	43	19.2	.23	16.0	30	13	35.6	.68	10.3

TABLEAU n° 10.- Identification à l'aide du modèle à bacs avec retour $\frac{\Delta C}{C} \cdot 10^2$ pourcentage d'amélioration par rapport au modèle piston diffusionnel

Essai n°	F	ω t/mn	Essai n°	F	ω t/mn
1		500	11		500
2		1000	12		1000
3	0.6	1500	13	1.1	1500
4		2000	14		2000
5		2500	14		2500
6		500	16		500
7		1000	17		1000
8	0.8	1500	18	1.4	1500
9		2000	19		2000
10		2500	20		2500
Débit total : 40 l/h					
x_e = 0.05 (en poids) y_e = 0.00 "					

TABLEAU n° 11.- Conditions expérimentales de mesure des profils de concentration

F : facteur d'extraction

ω : vitesse de rotation des disques

x_e, y_e : concentrations d'entrée

Valeurs initiales				Ecart résiduel	Sensibilités		
F	N_x	P_x	P_y	$C \cdot 10^3$	$\frac{\Delta N_x}{N_x} 10^2$	$\frac{\Delta P_x}{P_x} 10^2$	$\frac{\Delta P_y}{P_y} 10^2$
0,66	2.0	20.0	40.0	1.10	- 4.35	- 36.2	70.6
		40.0	80.0	-	-	-	-
		20.0	66.7	1.15	- 4.50	- 36.0	168
		40.0	133	-	-	-	-
	6.0	20.0	40.0	1.68	- 8.0	- 32.3	29.4
		40.0	80.0	1.28	- 6.35	- 45.3	37.4
		20.0	66.7	1.71	- 8.35	- 30.2	126
		40.0	133	1.30	- 6.50	- 43.9	55.0
1.50	3.0	20.0	40.0	1.01	- 0.3	- 17.4	∞
		40.0	80.0	2.10	- 0.9	- 28.2	∞
	9.0	20.0	40.0	1.27	0.1	- 10.9	∞
		40.0	80.0	3.56	0.9	- 8.6	∞

TABLEAU n° 12 - Variation des paramètres liée à une diminution de 5 % du facteur d'extraction

Note : Les lignes sur lesquelles ne figure aucun résultat correspondent aux cas où la méthode d'optimisation ne converge pas en partant des valeurs initiales des paramètres.

Valeurs initiales				Ecart résiduel	Sensibilités			
F	N_x	P_x	P_y	$C \cdot 10^5$	$\frac{\Delta F}{F} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta N_x}{N_x} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta P_x}{P_x} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta P_y}{P_y} \cdot 10^2$
0.66	2.0	20.0	40.0	5.6	1.6	- 3.6	11.0	- 12.9
		40.0	80.0	7.1	1.5	- 3.6	22.2	- 19.9
	6.0	20.0	40.0	52	0.1	- 9.2	15.2	- 15.5
		40.0	80.0	68	0.1	- 8.5	36.5	- 19.7
1.50	3.0	20.0	40.0	0.4	1.9	- 1.9	2.3	- 5.5
		40.0	80.0	0.5	1.9	- 1.9	3.6	- 9.0
	9.0	20.0	40.0	0.4	1.9	- 4.6	0.7	- 2.7
		40.0	80.0	0.3	1.9	- 4.2	0.7	- 3.4

TABLEAU n° 13 - Variation des paramètres liée à une augmentation de 2 % du coefficient de partage.

Valeurs initiales				Ecart résiduel	Sensibilités			
F	N_x	P_x	P_y	$C \cdot 10^6$	$\frac{\Delta F}{F} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta N_x}{N_x} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta P_x}{P_x} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta P_y}{P_y} \cdot 10^2$
0.66	2.0	20.0	40.0	3.3	- 0.1	- 0.1	5.4	0.2
		40.0	80.0	1.1	0.0	0.0	4.9	0.5
	6.0	20.0	40.0	3.7	0.0	- 0.2	2.6	- 0.8
		40.0	80.0	0.8	0.0	0.0	1.4	0.3
1.50	3.0	20.0	40.0	3.0	- 0.6	- 0.6	9.9	- 0.6
		40.0	80.0	0.9	- 0.3	- 0.3	10.1	- 0.3
	9.0	20.0	40.0	1.4	- 0.9	- 0.9	11.2	- 0.8
		40.0	80.0	0.3	- 0.6	- 0.6	11.2	- 0.3

TABLEAU n° 14 - Variation des paramètres liée à une diminution de 10 % du saut de concentration à l'entrée de la phase x.

Valeurs initiales				Ecart Résiduel	Sensibilités			
F	N_x	P_x	P_y	$C \cdot 10^5$	$\frac{\Delta F}{F} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta N_x}{N_x} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta P_x}{P_x} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta P_y}{P_y} \cdot 10^2$
0.66	2.0	20.0	40.0	.27	0.5	- 6.0	- 8.2	6.3
		40.0	80.0	.33	0.5	- 5.7	-14.7	10.4
	6.0	20.0	40.0	.66	0.0	-13.3	- 6.5	- 7.1
		40.0	80.0	.84	0.0	-12.1	- 9.3	-13.2
1.50	3.0	20.0	40.0	.55	0.6	- 7.5	-12.2	24.2
		40.0	80.0	.84	0.9	- 7.2	-20.0	57.9
	9.0	20.0	40.0	1.81	0.8	-14.9	-15.8	29.3
		40.0	80.0	3.21	1.0	-13.6	-23.7	69.3

TABLEAU n° 15.- Variation des paramètres liée au remplacement de la relation d'équilibre $y = 0.245\ x + 0.618\ x^2$ par $y = 0.275\ x$.

Valeurs initiales				Ecart Résiduel	Sensibilités			
F	N^o_x	P_x	P_y	$C.10^3$	$\frac{\Delta F}{F}.10^2$	$\frac{\Delta N_x}{N_x}.10^2$	$\frac{\Delta P_x}{P_x}.10^2$	$\frac{\Delta P_y}{P_y}.10^2$
0.66	2.0	20.0	40.0	.24	- 1.2	1.0	21.1	-22.1
		40.0	80.0	.28	- 1.4	1.0	41.8	-31.0
	6.0	20.0	40.0	.08	- 0.9	4.1	0.7	- 5.6
		40.0	80.0	.09	- 0.9	4.9	- 0.6	- 8.3
1.50	3.0	20.0	40.0	.22	- 1.0	- 2.1	21.2	-29.0
		40.0	80.0	.28	- 1.2	- 2.4	37.9	-41.8
	9.0	20.0	40.0	.09	- 0.5	- 4.6	8.3	-14.7
		40.0	80.0	.12	- 0.3	- 5.3	12.2	-22.6

TABLEAU n° 16. - Variation des paramètres liée à une variation du produit $K_x a$.

Valeurs initiales				Ecart résiduel	Sensibilités			
F	N_x	P_x^o	P_y^o	$C \cdot 10^5$	$\frac{\Delta F}{F} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta N_x}{N_x} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta P_x}{P_x} \cdot 10^2$	$\frac{\Delta P_y}{P_y} \cdot 10^2$
0.66	2.0	20.0	40.0	2.0	0.5	0.0	0.3	- 12.3
		40.0	80.0	0.5	0.3	0.0	- 1.0	- 13.2
	6.0	20.0	40.0	1.4	0.4	- 0.3	3.9	- 14.6
		40.0	80.0	0.6	0.0	- 0.4	0.8	- 14.0
1.5	3.0	20.0	40.0	1.6	0.5	- 0.1	- 2.6	- 1.8
		40.0	80.0	0.4	0.3	0.0	- 2.9	- 3.0
	9.0	20.0	40.0	2.2	0.4	0.0	- 3.4	7.0
		40.0	80.0	0.5	0.4	- 0.6	- 3.0	4.3

TABLEAU n° 17. - Influence d'une variation dans la retenue de la phase dispersée : $\Psi(z) = 0.09\ (1 + 0.55z)$

Point nominal						Grand diamètre			
F	N_x	P_x	P_y	$\frac{D}{d}$	$\lambda_{min} \cdot 10^2$	N_x	N_y	P_x	P_y
.675	1.93	22.2	34.8	1270	.55	.021	-.004	.71	.70
		48.9	64.1	4720	.16	.021	.006	.71	.70
	5.45	23.0	33.8	930	1.74	.19	.12	.69	.69
		54.6	64.3	2220	.84	.18	.12	.70	.68
1.53	2.94	20.5	37.8	1030	.65	-.004	.008	.64	.77
		41.4	72.8	3310	.22	.007	.016	.69	.73
	8.60	20.1	38.9	1310	1.16	.07	.13	.44	.88
		40.3	77.3	1820	.95	.12	.18	.63	.75

TABLEAU n° 18 - Etude des surfaces isocritères

Essai n°	$C.10^3$	F	N_x	P_x	P_y	F^*
1	5.23	.489	1.51	44.5	10.4	.516
2	5.58	.630	3.36	14.0	14.6	.630
3	5.67	.616	3.87	38.9	8.0	.608
6	3.75	.681	3.03	21.6	5.5	.713
7	8.97	.809	6.54	26.7	10.8	.839
8	2.70	.835	8.59	14.4	25.7	.852
9	3.33	.804	9.42	34.8	10.4	.808
11	9.65	.917	3.07	14.3	8.2	.987
12	11.9	.968	5.95	11.7	26.5	1.079
13	7.03	1.039	6.57	13.7	36.5	1.126
14	3.38	1.107	9.92	10.4	19.2	1.142
15	3.52	1.084	11.0	13.4	8.6	1.110
16	2.89	1.243	5.29	9.3	11.0	1.216
17	3.87	1.386	6.78	7.8	30.9	1.338
18	0.96	1.414	11.9	6.8	818	1.408
20	8.38	1.357	15.4	7.8	∞	1.308

TABLEAU n°19. - Résultat de l'identification avec le modèle de MIYAUCHI.

Essai n°	P_x	$\tilde{P}_x$	P_x^*	P_y	$\tilde{P}_y$	P_y^*
1	44.5	2.73	43.9	10.4	14.3	190
2	14.0	3.57	41.6	14.6	7.8	190
3	38.9	2.80	41.5	8.0	6.8	190
4	-	1.0	33.8	-	4.4	100
5	-	0.91	35.4	-	12.1	84
6	21.6	5.0	40.2	5.5	4.8	188
7	26.7	3.4	37.5	10.8	7.8	188
8	14.4	4.0	39.2	25.7	15.0	190
9	34.8	4.2	31.1	10.4	9.0	150
10	-	2.8	29.3	-	6.6	80
11	14.3	3.2	33.3	8.2	13.0	188
12	11.7	5.0	33.3	26.5	30.0	190
13	13.7	7.6	29.2	36.5	36.7	190
14	10.4	7.8	26.1	19.2	10.0	105
15	13.4	7.7	24.7	8.6	5.7	59
16	9.3	5.3	28.1	11.0	3.6	188
17	7.8	7.3	25.7	30.9	3.8	188
18	6.8	6.4	23.9	818	20.0	156
19	-	7.3	20.1	-	6.7	80
20	7.8	6.4	18.7	∞	0	76

TABLEAU n° 20. - Comparaison de trois estimations du nombre de Peclet.

Essai n°	$C.10^5$	$\overline{N}_x$	$\overline{N}_y$	γ
1	.24	1.28	2.74	.52
2	.13	3.66	6.31	-.94
3	.37	3.80	6.39	-.52
4	.86	3.54	5.89	1.87
5	-	-	-	-
6	.49	3.05	3.72	.99
7	.95	7.80	8.60	1.45
8	.49	9.35	12.2	-.59
9	1.23	8.50	10.7	.36
10	1.26	9.0	11.2	1.63
11	.12	3.18	3.32	1.25
12	.28	6.75	6.86	1.24
13	.20	7.35	7.30	.94
14	.35	9.95	10.2	.50
15	.11	12.8	12.5	1.06
16	.87	5.96	4.93	.89
17	.60	6.43	5.48	0.0
18	.29	10.0	9.37	-.76
19	1.1	10.7	10.7	-1.95
20	2.5	12.3	13.3	-2.0

TABLEAU n° 21. - Identification avec nombre d'unités de transfert variable $N_x = \overline{N}_x\ (1 + \gamma\,(z-0.5))$

LISTE DES FIGURES

1 - Différentes techniques d'extraction

2 - Comparaison des temps de passage. Modèle piston diffusionnel

3 - Comparaison des nombres de PECLET. Modèle piston diffusionnel

4 - Comparaison des temps de passage. Modèles piston diffusionnel et à bacs en cascade

5 - Comparaison nombre de bacs et nombre de PECLET

6 - Coefficient de diffusion apparente

7 à 10 - Ajustement du modèle piston diffusionnel

11 à 14 - Ajustement du modèle piston diffusionnel avec retard pur

15 - Schéma global du traitement des profils de concentration

16 - Schéma de l'étude de la sensibilité de l'identification aux erreurs sur les données

17 - Schéma de l'étude de la sensibilité de l'identification aux écarts par rapport aux hypothèses

18 et 19 - Exemples de courbes opératoires

20 - Ajustement du modèle de MIYAUCHI

21 à 24 - Mesures locales de N_y

25 à 28 - Meusres locales de P_x

29 - Courbe d'équilibre du système eau-acide acétique-éther isopropylique.

-:-:-:-:-:-:-

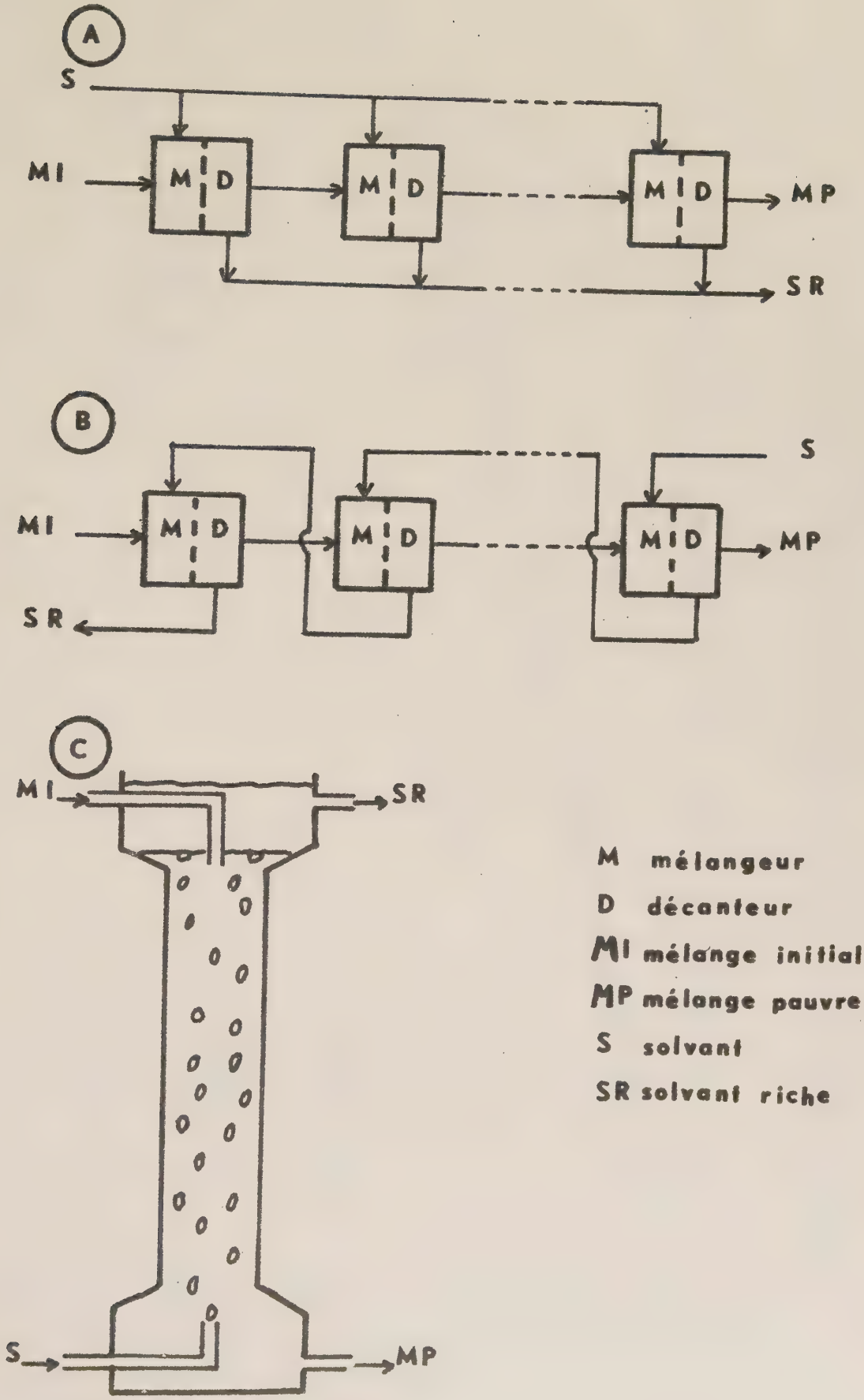


FIGURE 1 - Différentes techniques d'extraction

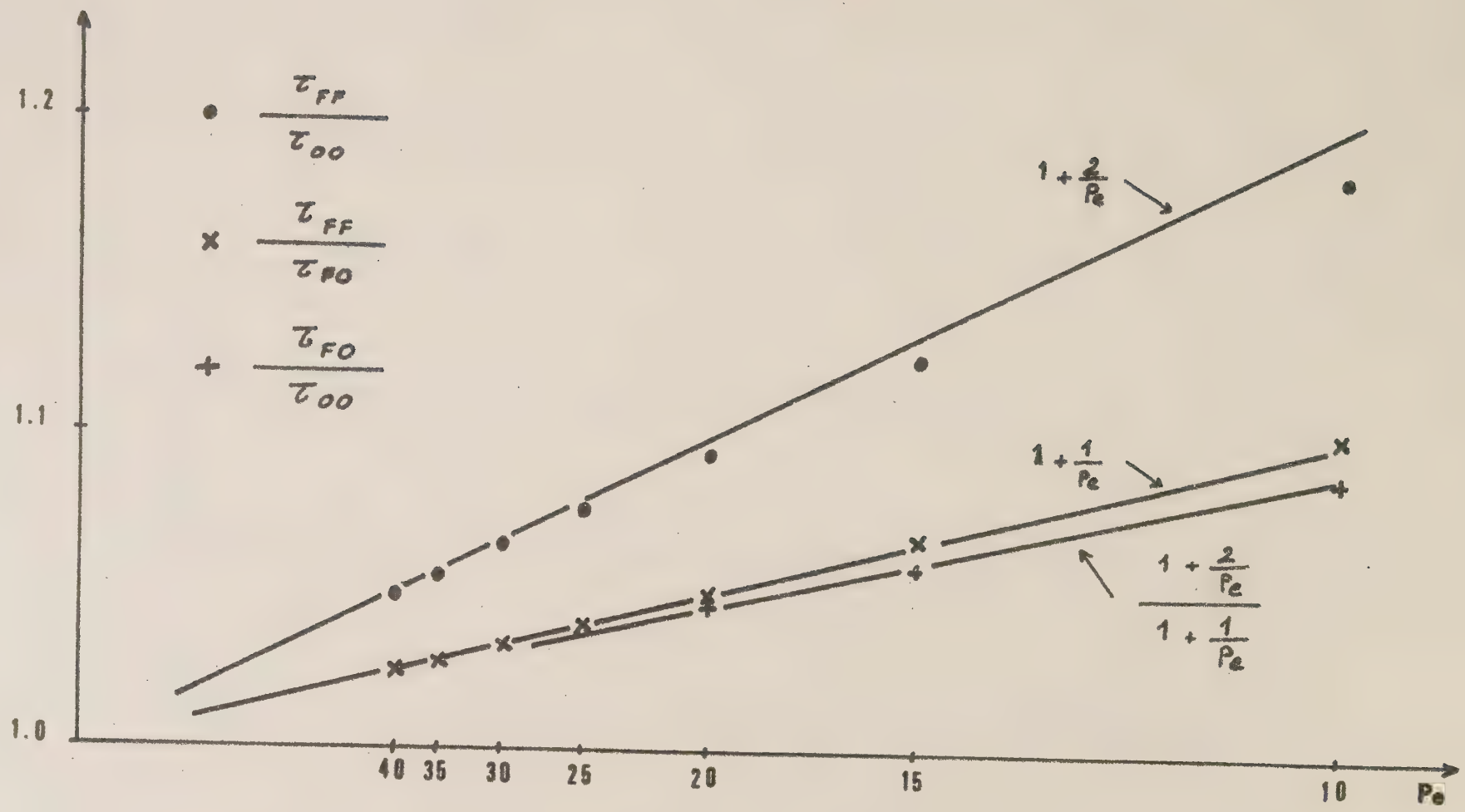


FIGURE 2 - Comparaison des temps de passage. Modèle piston diffusionnel

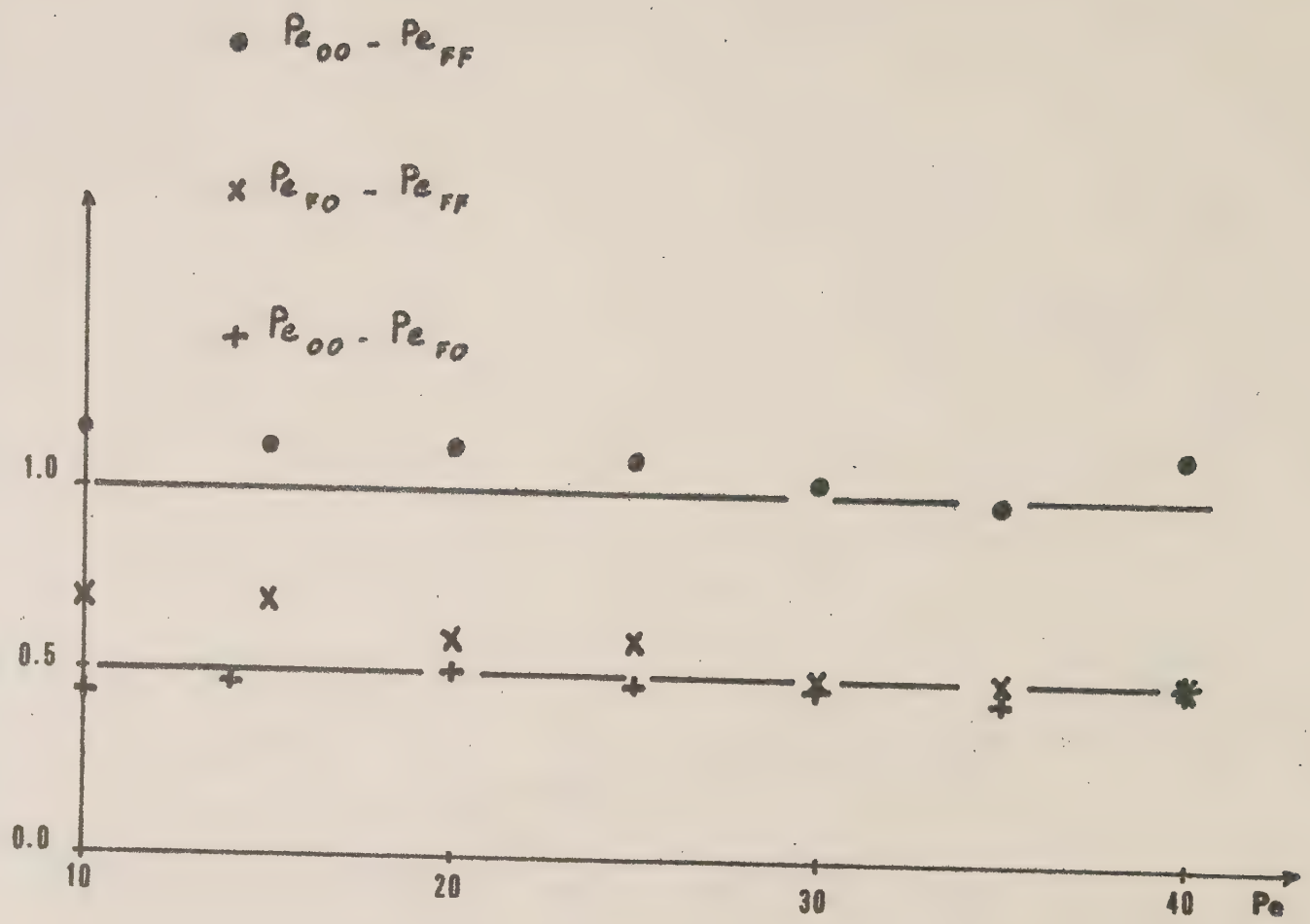


FIGURE 3 - Comparaison des nombres de PECLET. Modèle piston diffusionnel

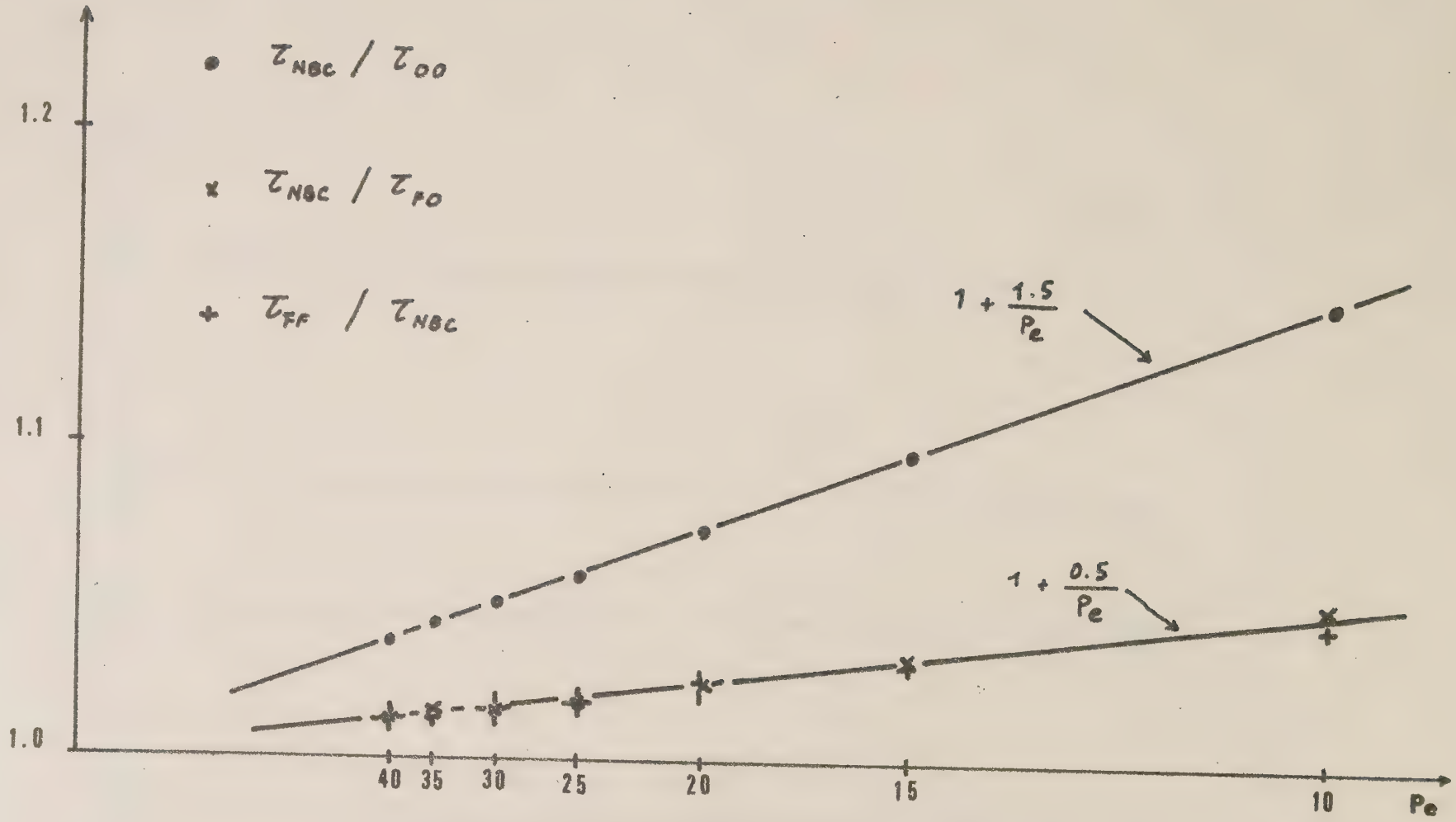


FIGURE 4 - Comparaison des temps de passage. Modèles piston diffusionnel et à bac en cascade

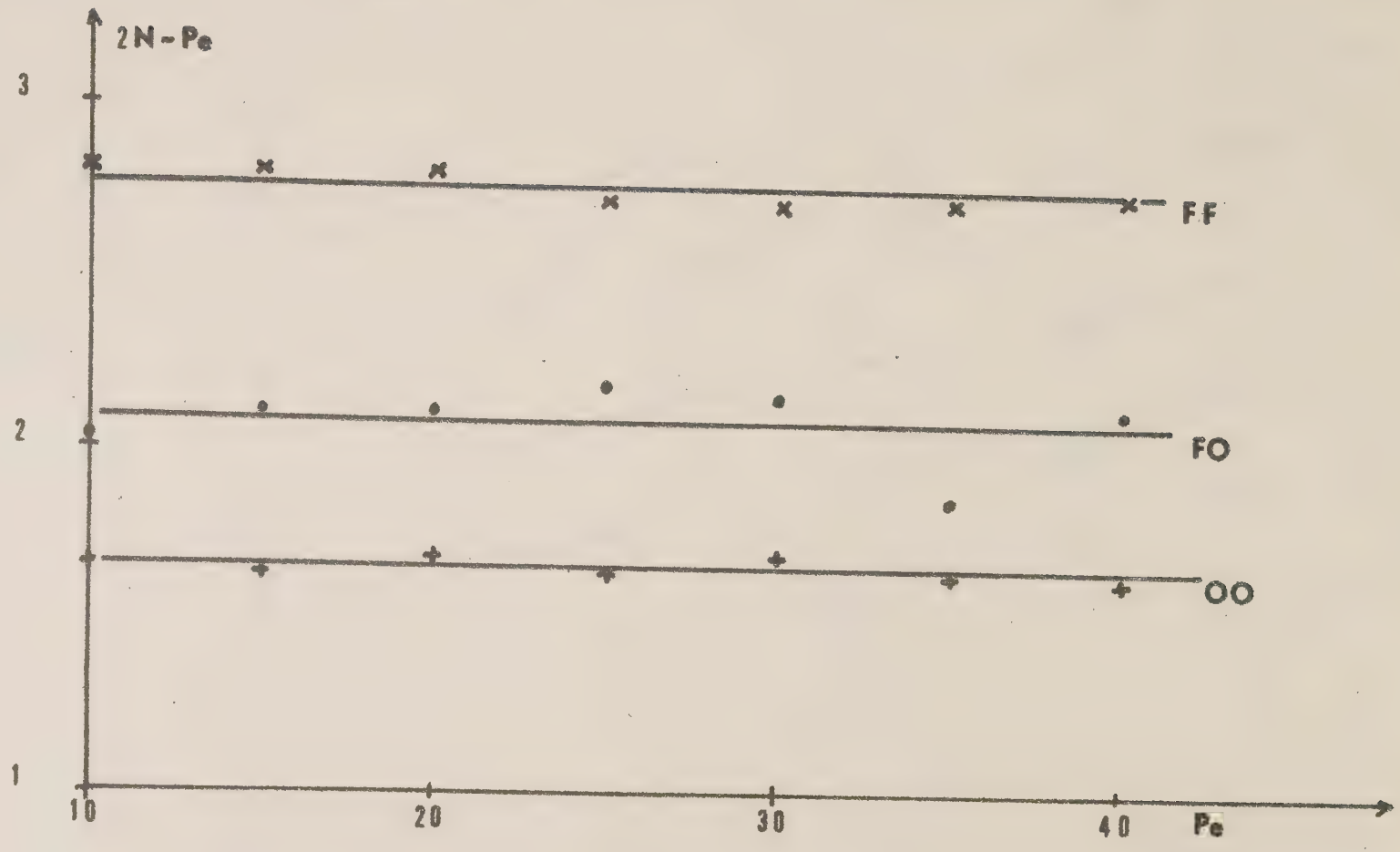


FIGURE 5 - Comparaison nombre de bacs et nombre de PECLET

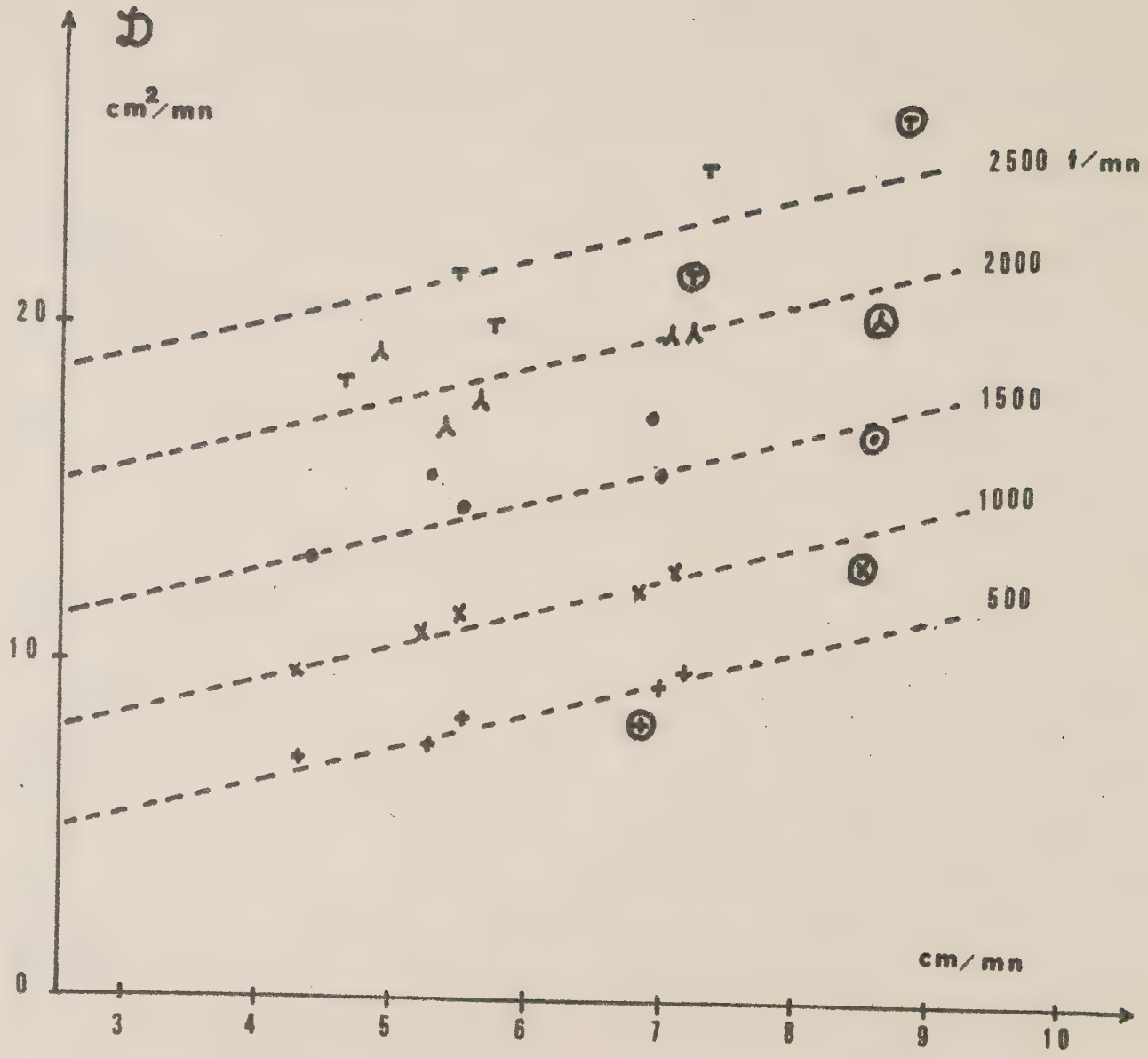


FIGURE 6 - Coefficient de diffusion apparente

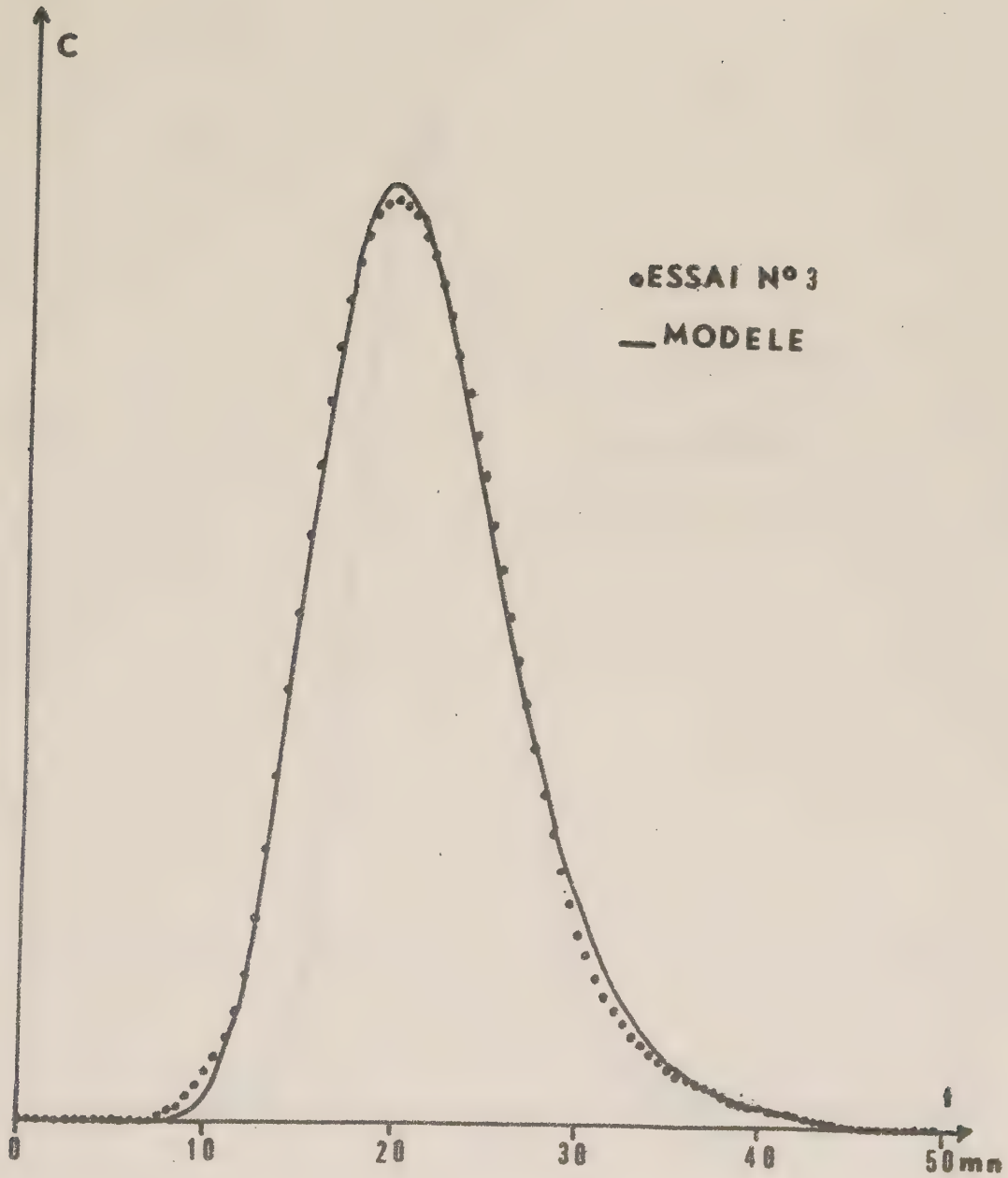


FIGURE 7 - Ajustement du modèle piston diffusionnel fermé-ouvert
Essai n° 3 - Domaine temporel

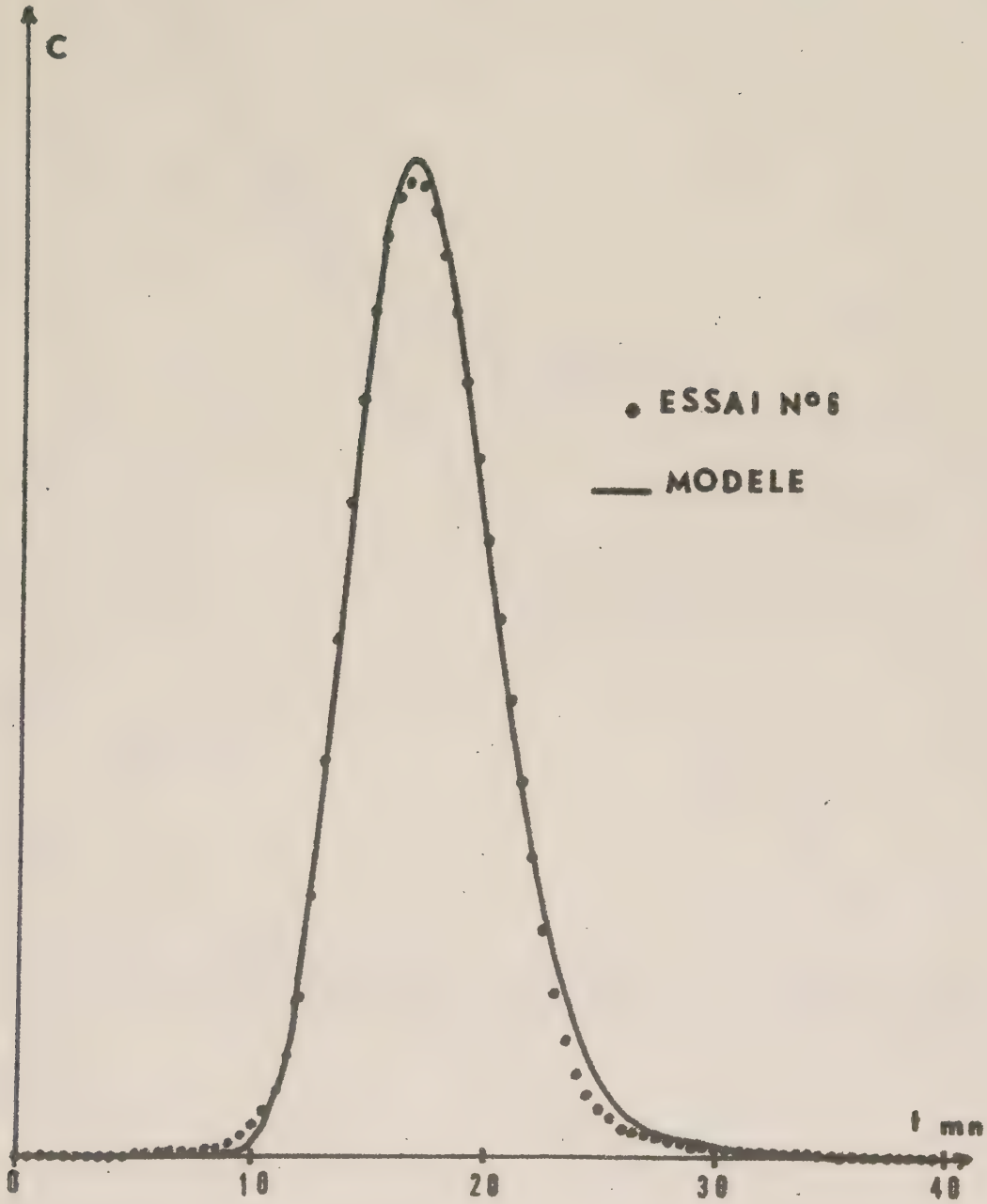


FIGURE 8 - Ajustement du modèle piston diffusionnel fermé-ouvert
Essai n° 6. Domaine temporel

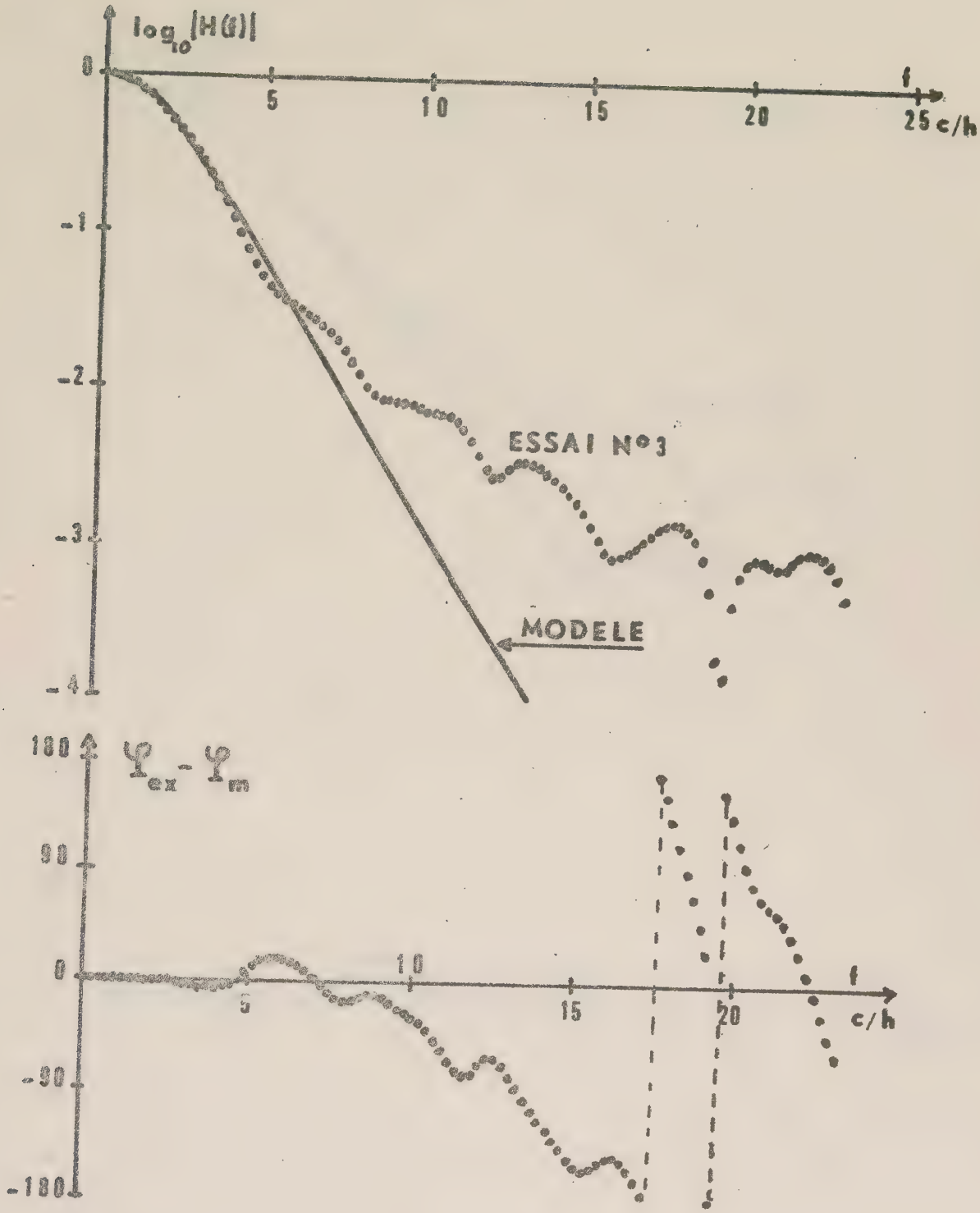


FIGURE 9 - Ajustement du modèle piston diffusionnel fermé-ouvert
Essai n° 3. Domaine fréquentiel

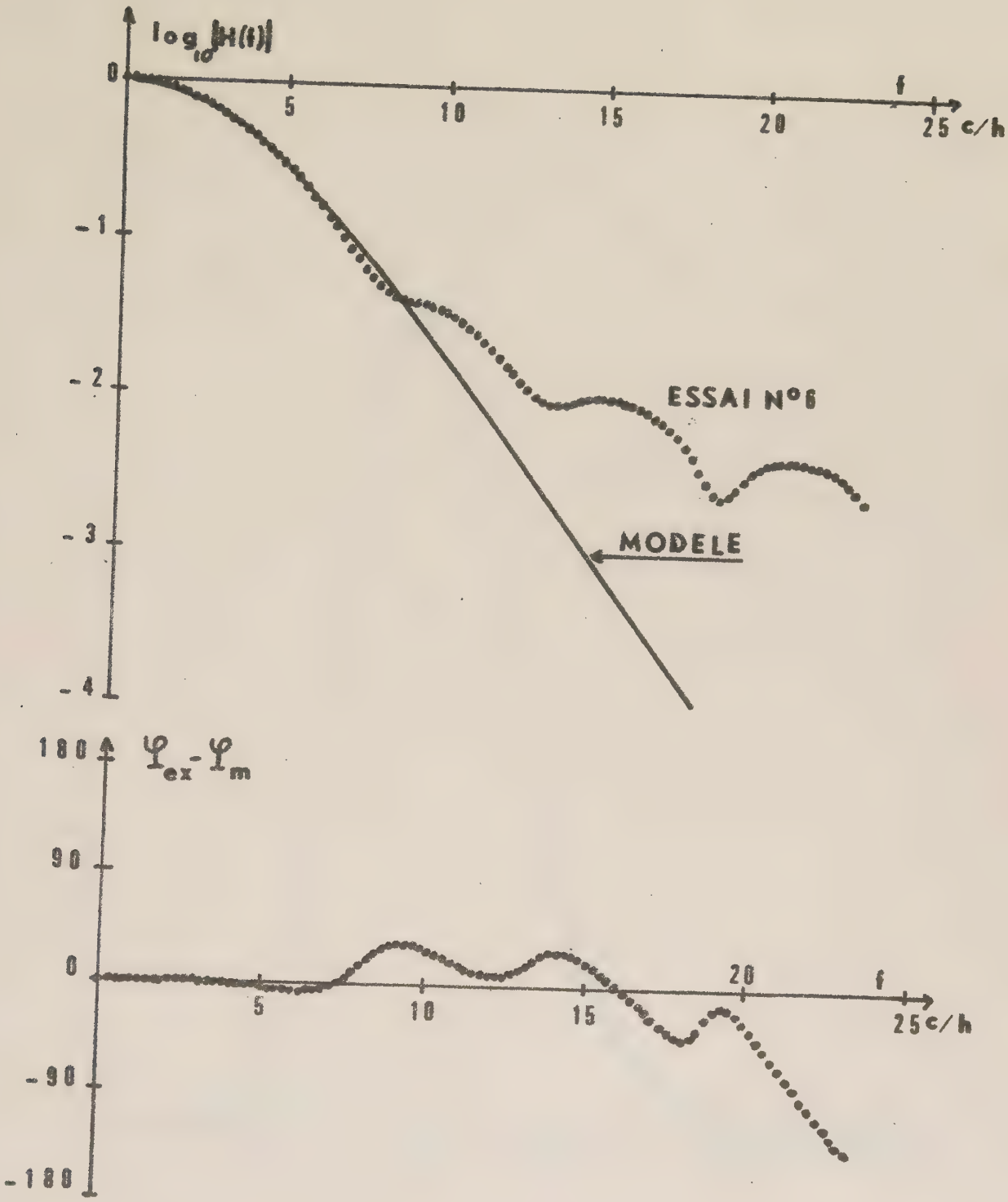


FIGURE 10 - Ajustement du modèle piston diffusionnel fermé-ouvert
Essai n° 6. Domaine fréquentiel

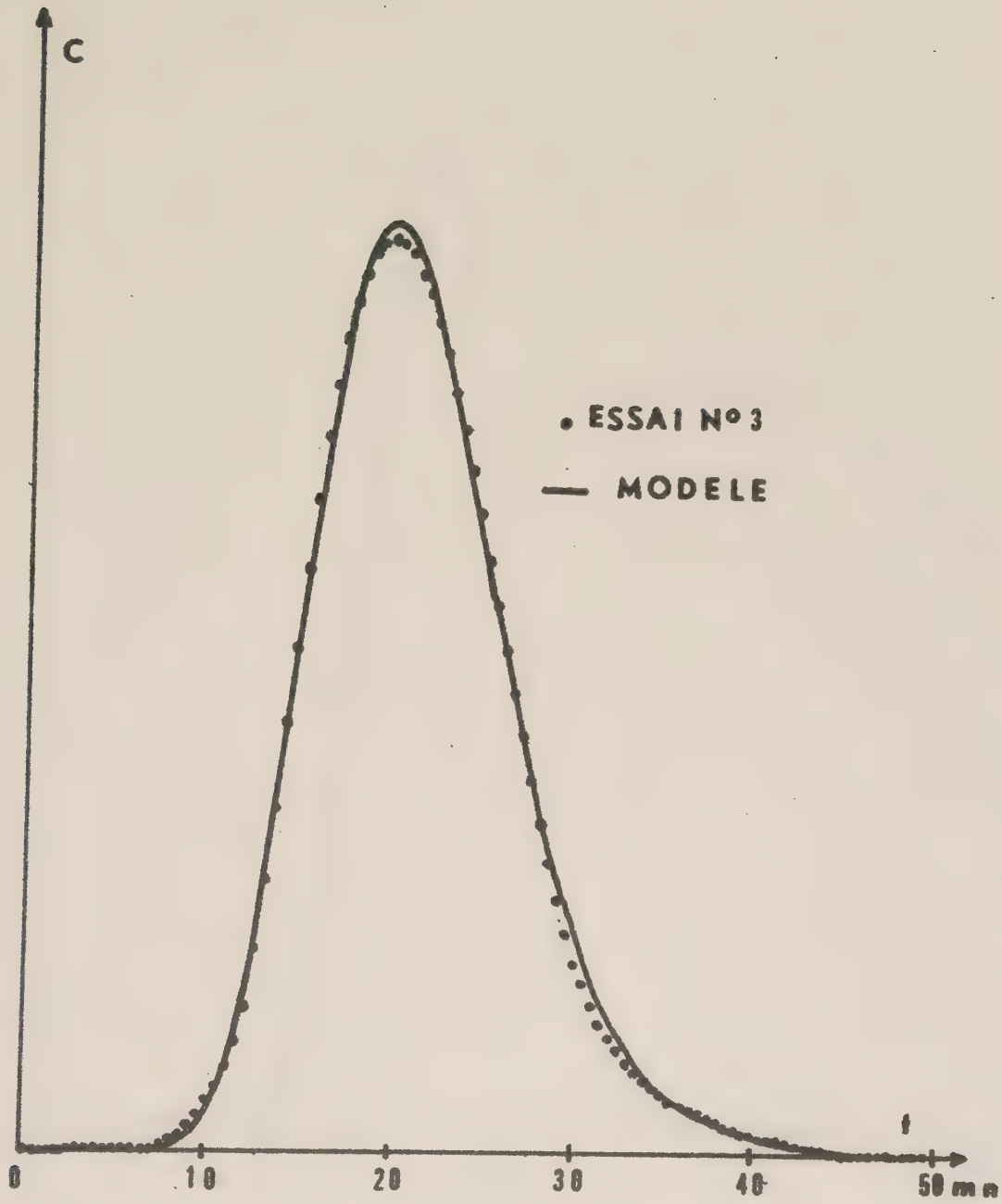


FIGURE 11 - Ajustement du modèle piston diffusionnel avec retard pur Essai n° 3. Domaine temporel

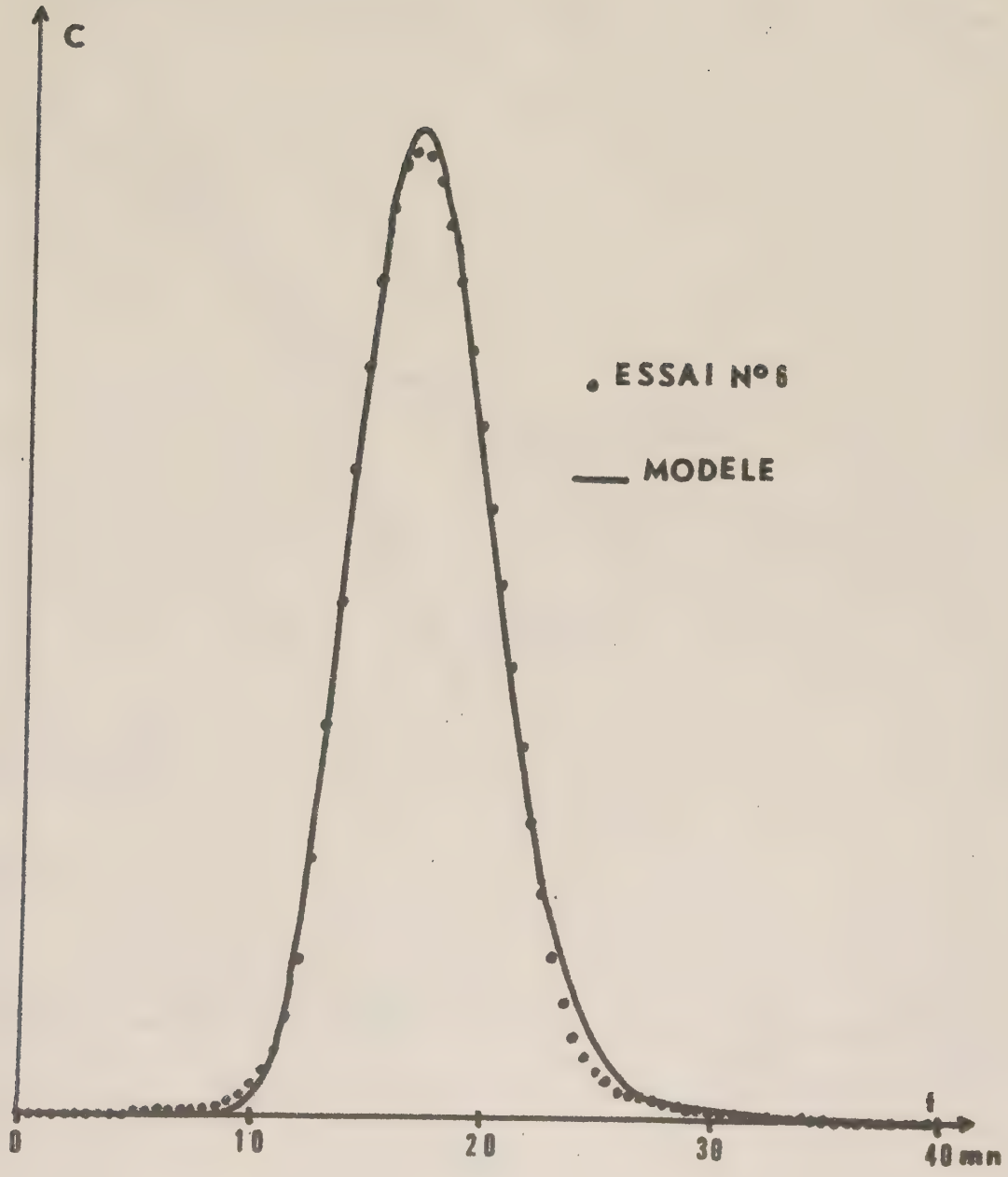


FIGURE 12 - Ajustement du modèle piston diffusionnel avec retard pur. Essai n° 6. Domaine temporel

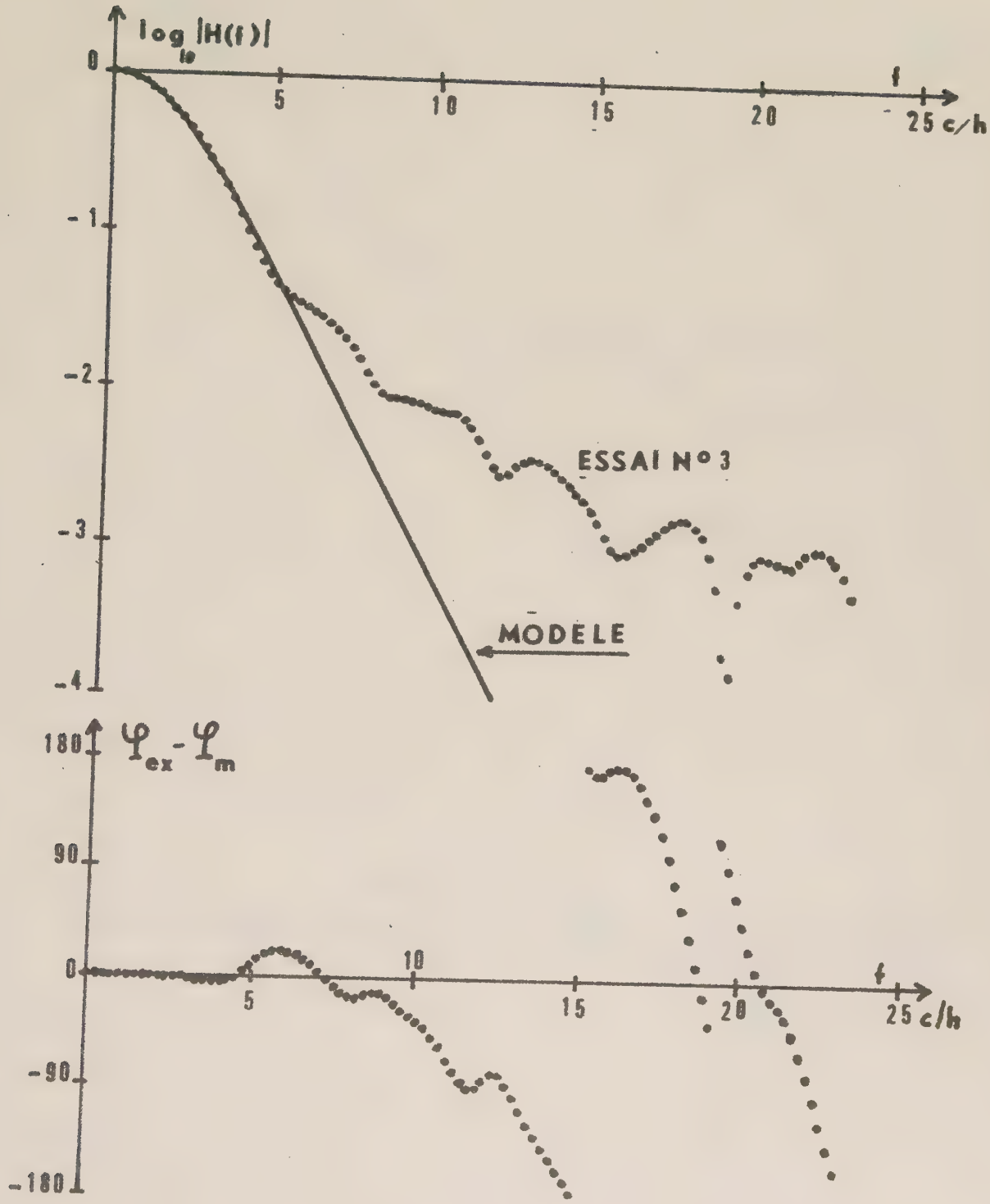


FIGURE 13 - Ajustement du modèle piston diffusionnel avec retard pur Essai n° 3. Domaine fréquentiel

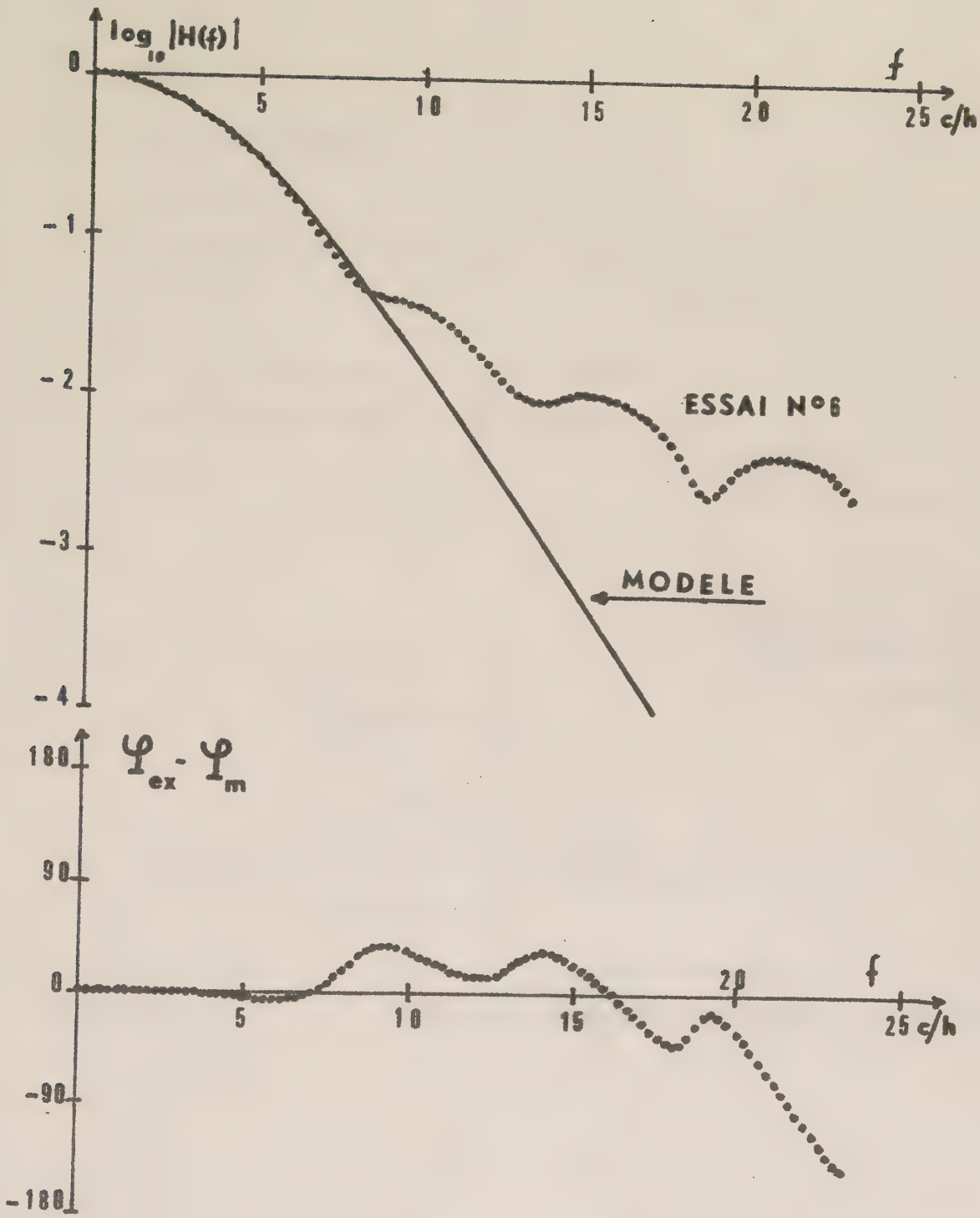


FIGURE 14 - Ajustement du modèle piston diffusionnel avec retard pur. Essai n° 6. Domaine fréquentiel

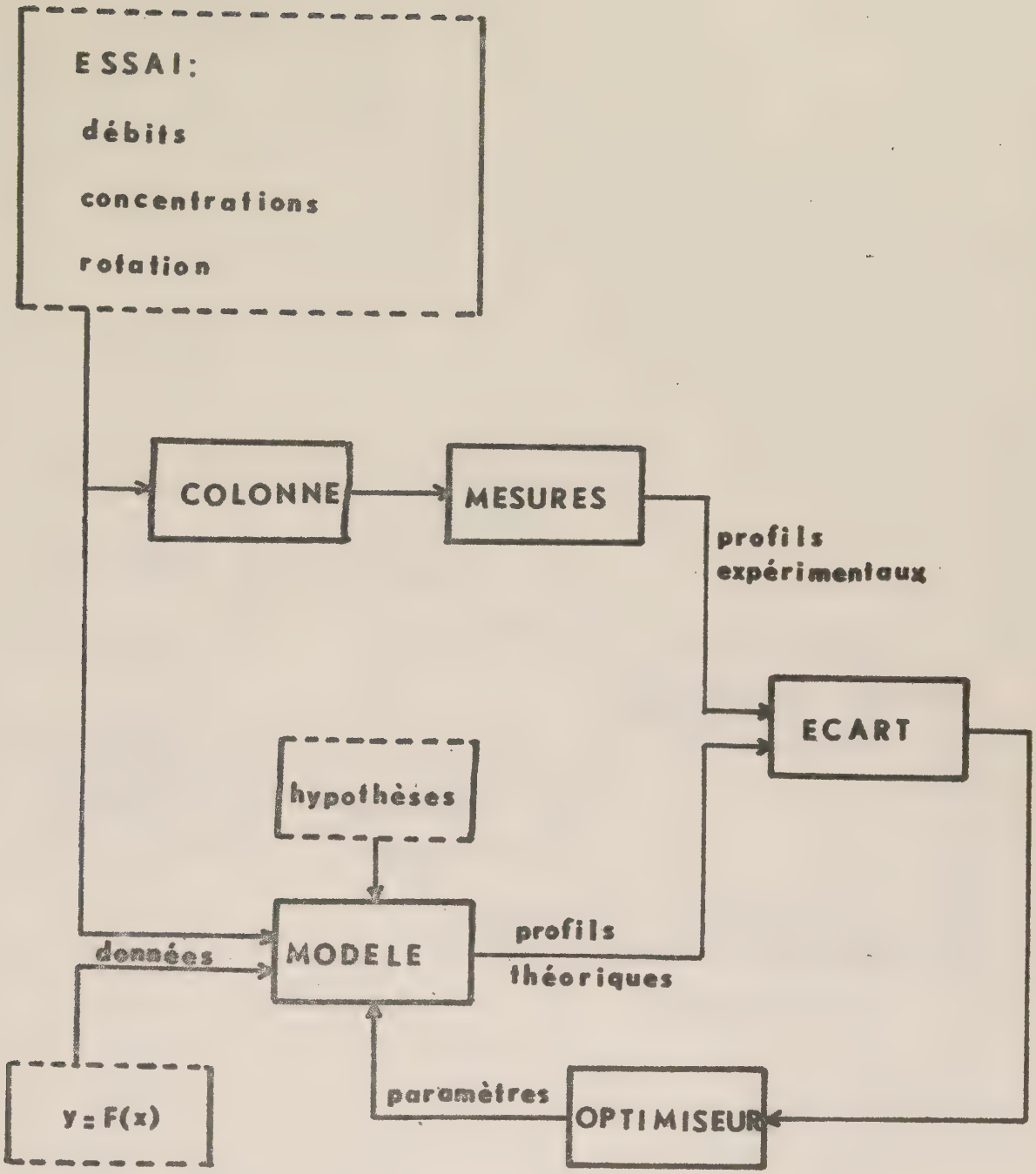
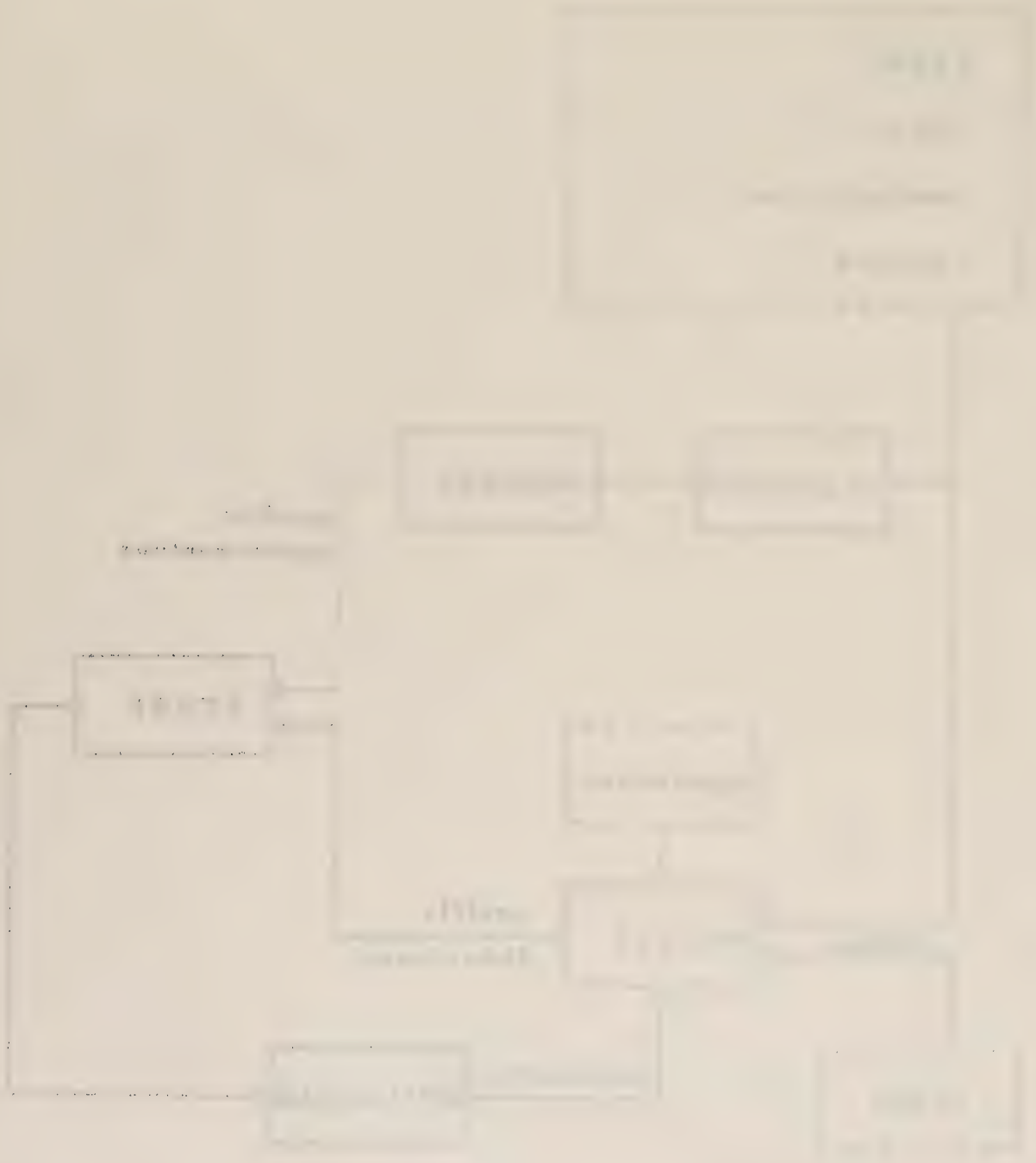


FIGURE 15 - Schéma global du traitement des profils de concentration



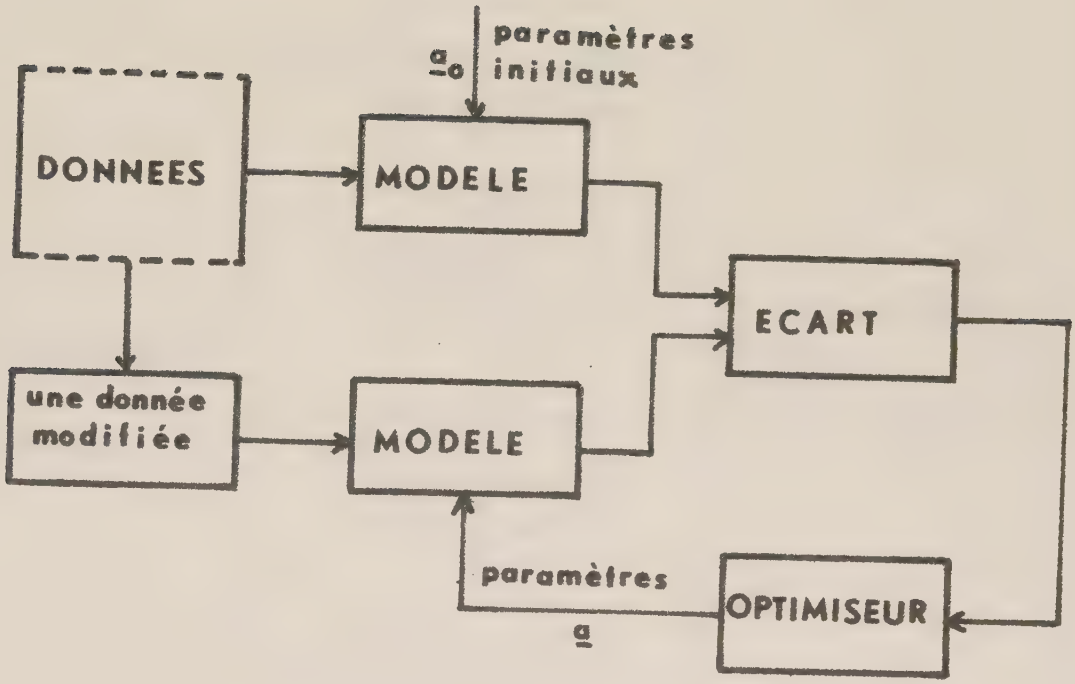


FIGURE 16 - Schéma de l'étude de la sensibilité de l'identification aux erreurs sur les données

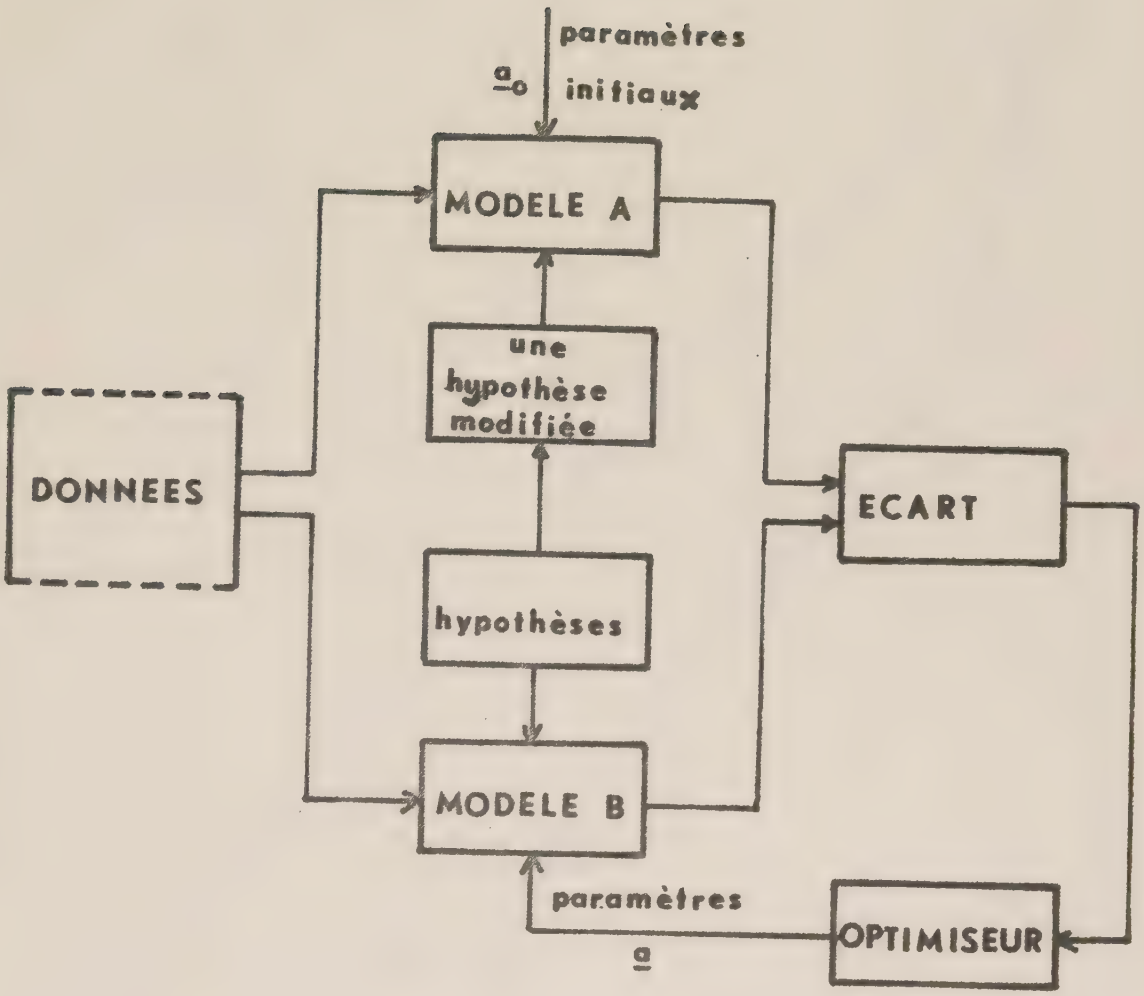


FIGURE 17 - Schéma de l'étude de la sensibilité de l'identification aux écarts par rapport aux hypothèses

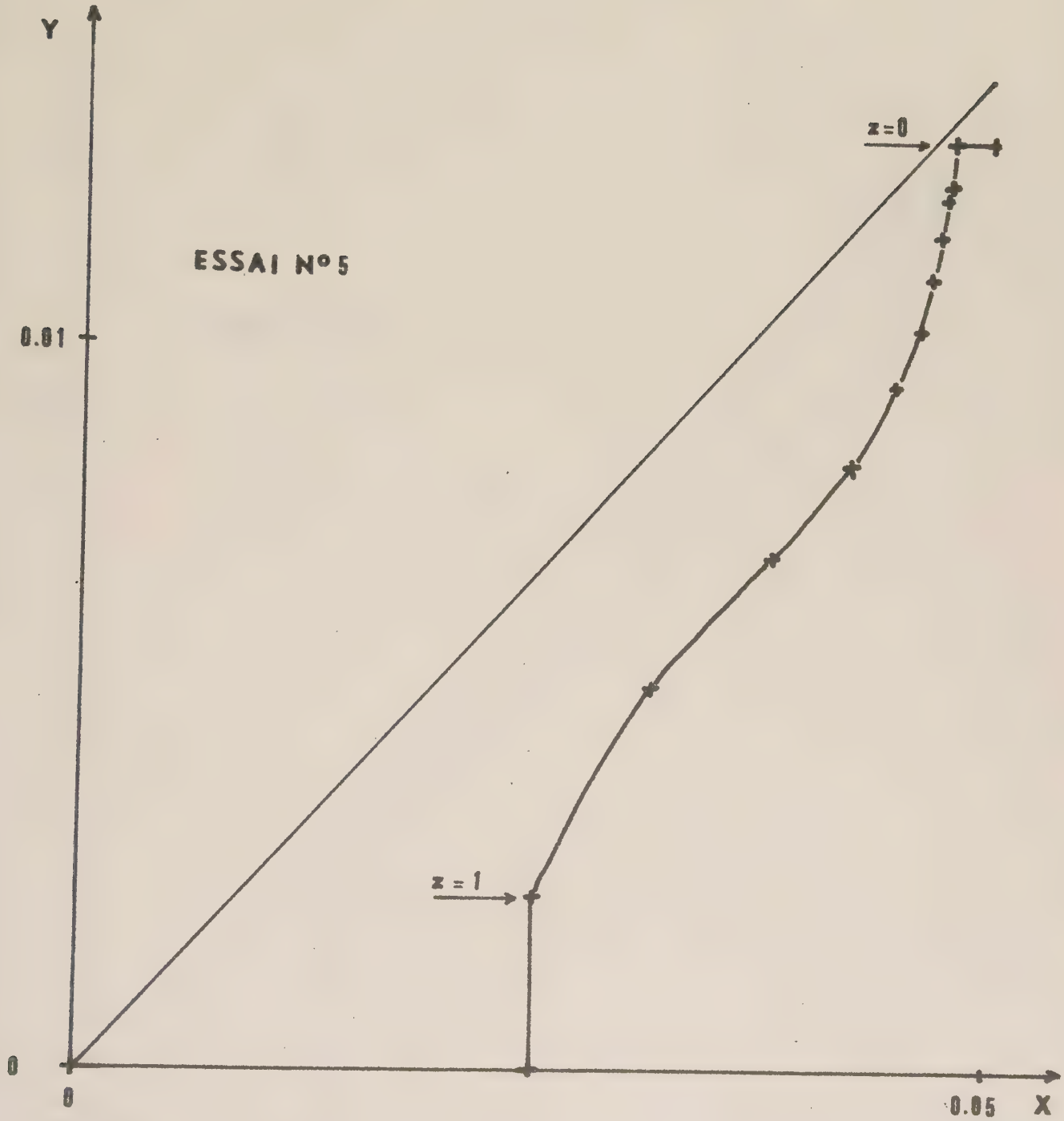


FIGURE 18 - Exemple de courbe opératoire. Essai n° 5

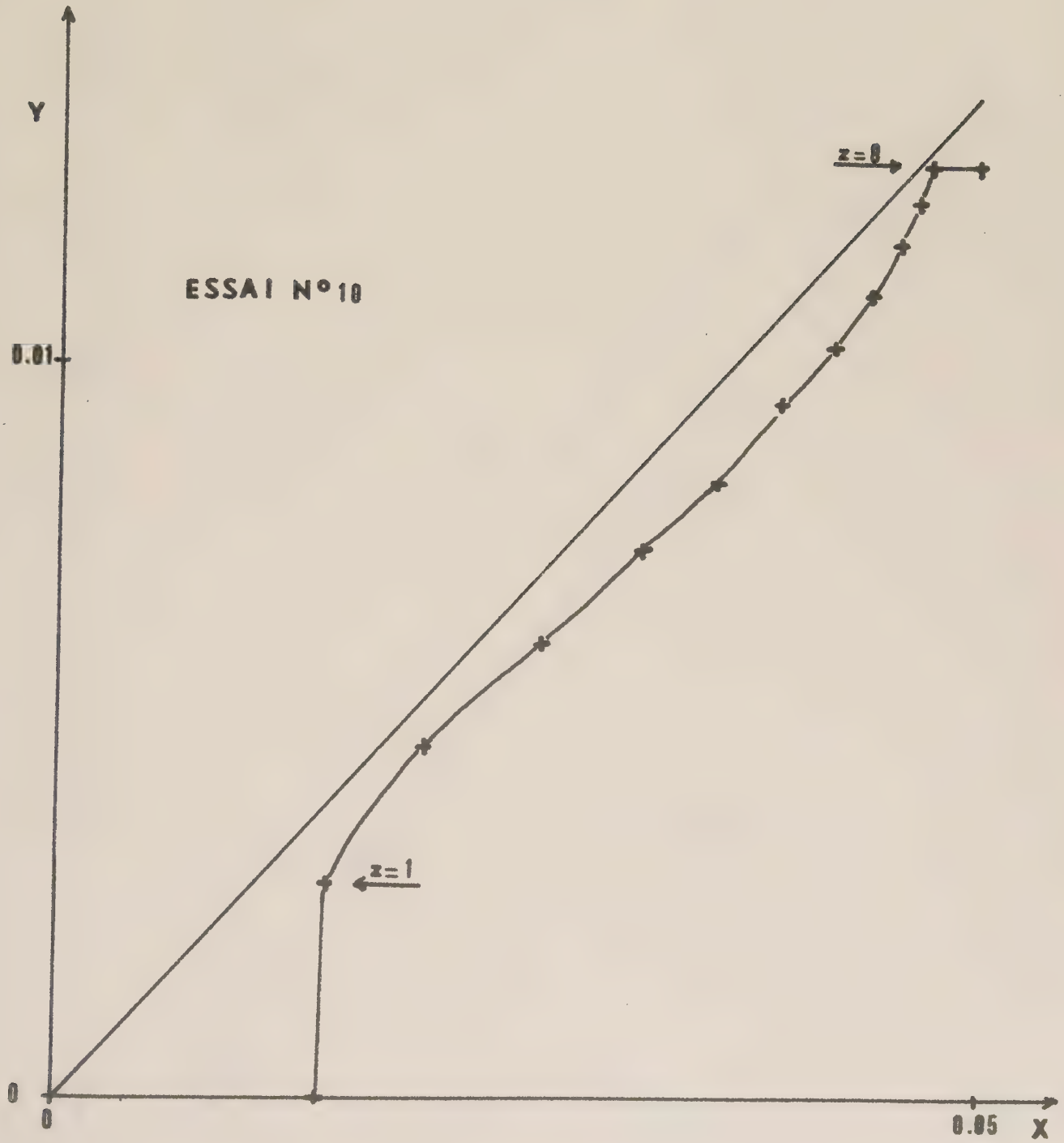


FIGURE 19 - Exemple de courbe opératoire. Essai n° 10

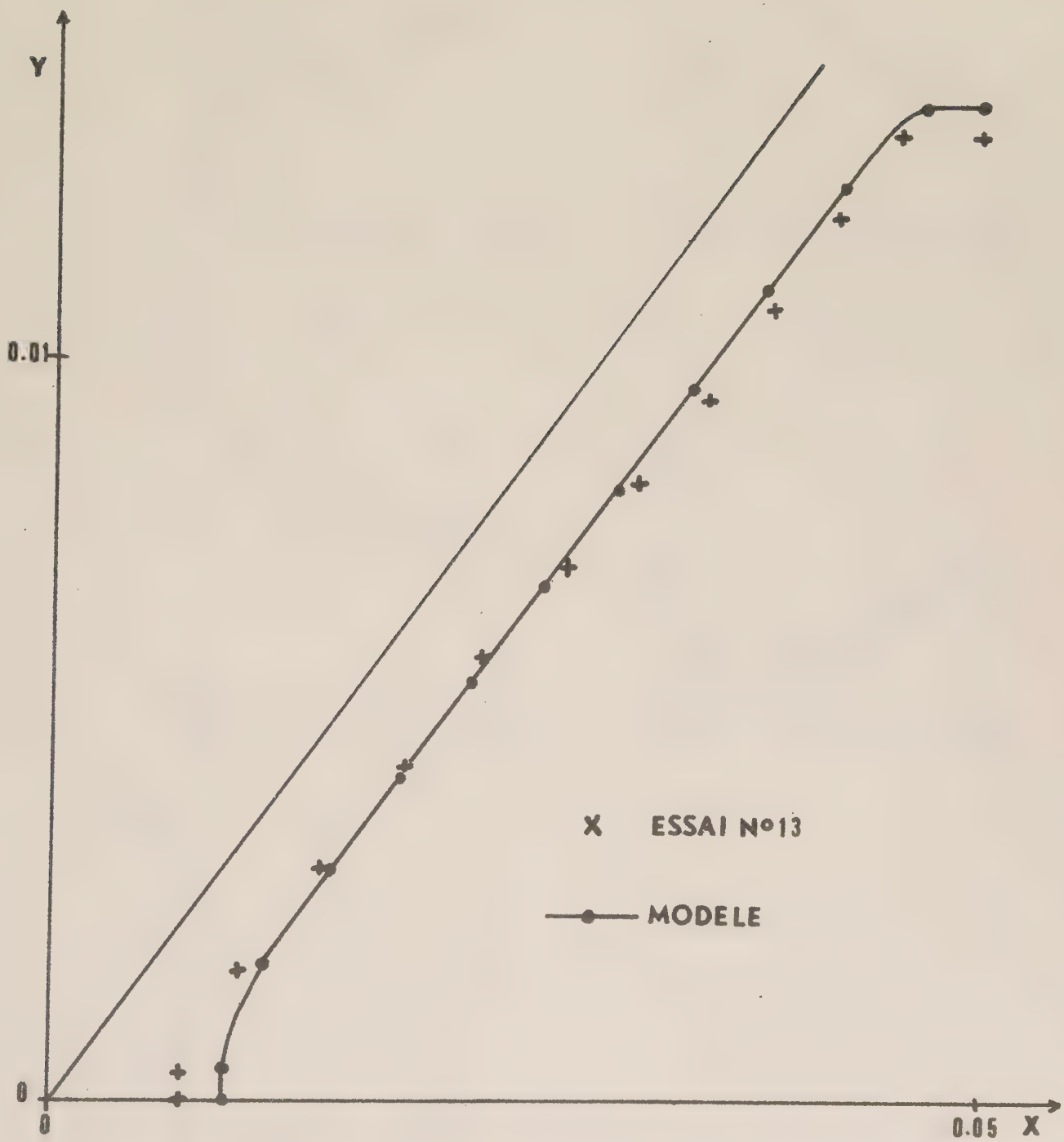


FIGURE 20 - Ajustement du modèle de MIYAUCHI. Essai n° 13

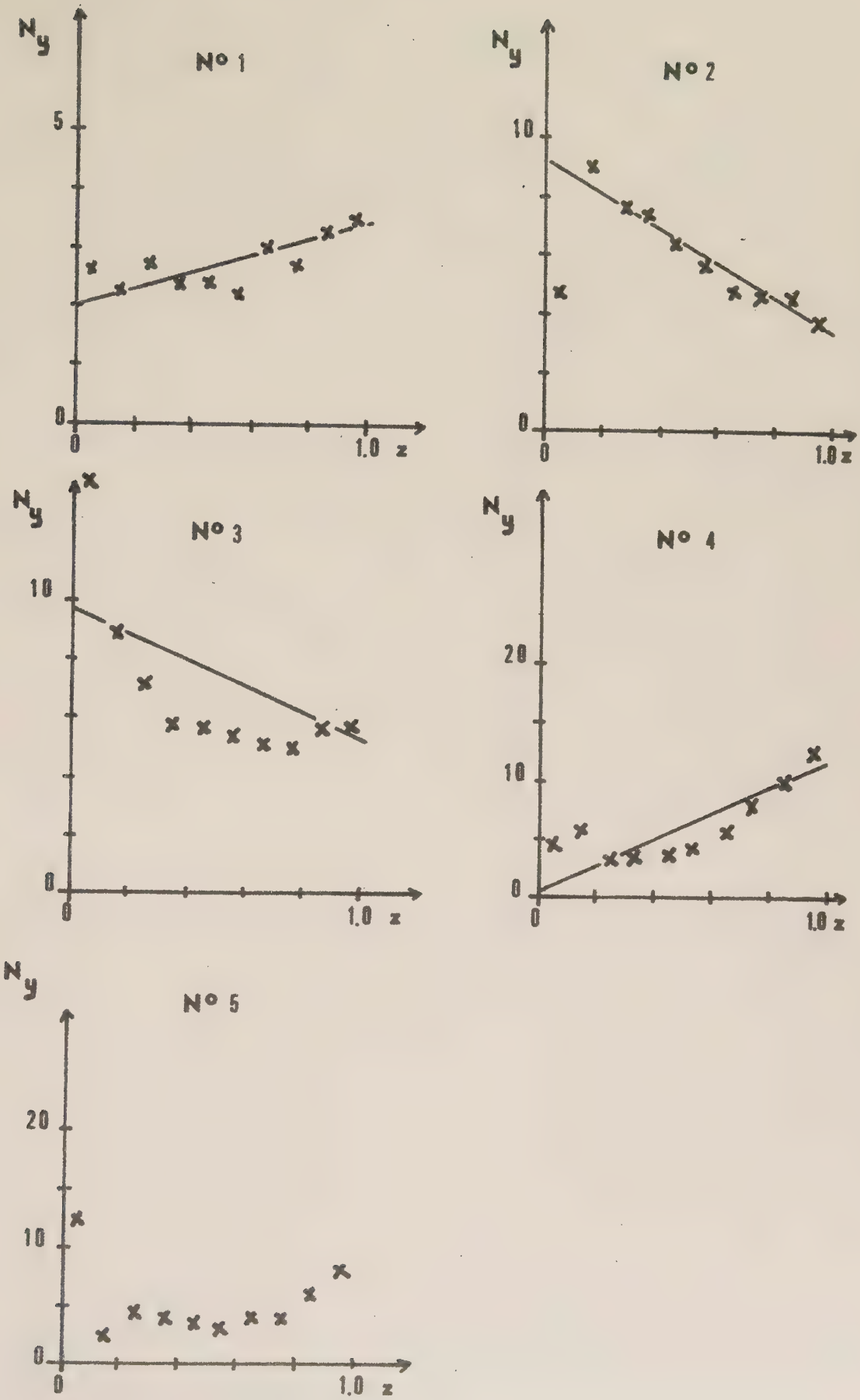


FIGURE 21 - Mesures locales de N_y. Essais 1 à 5 (F = 0,6)

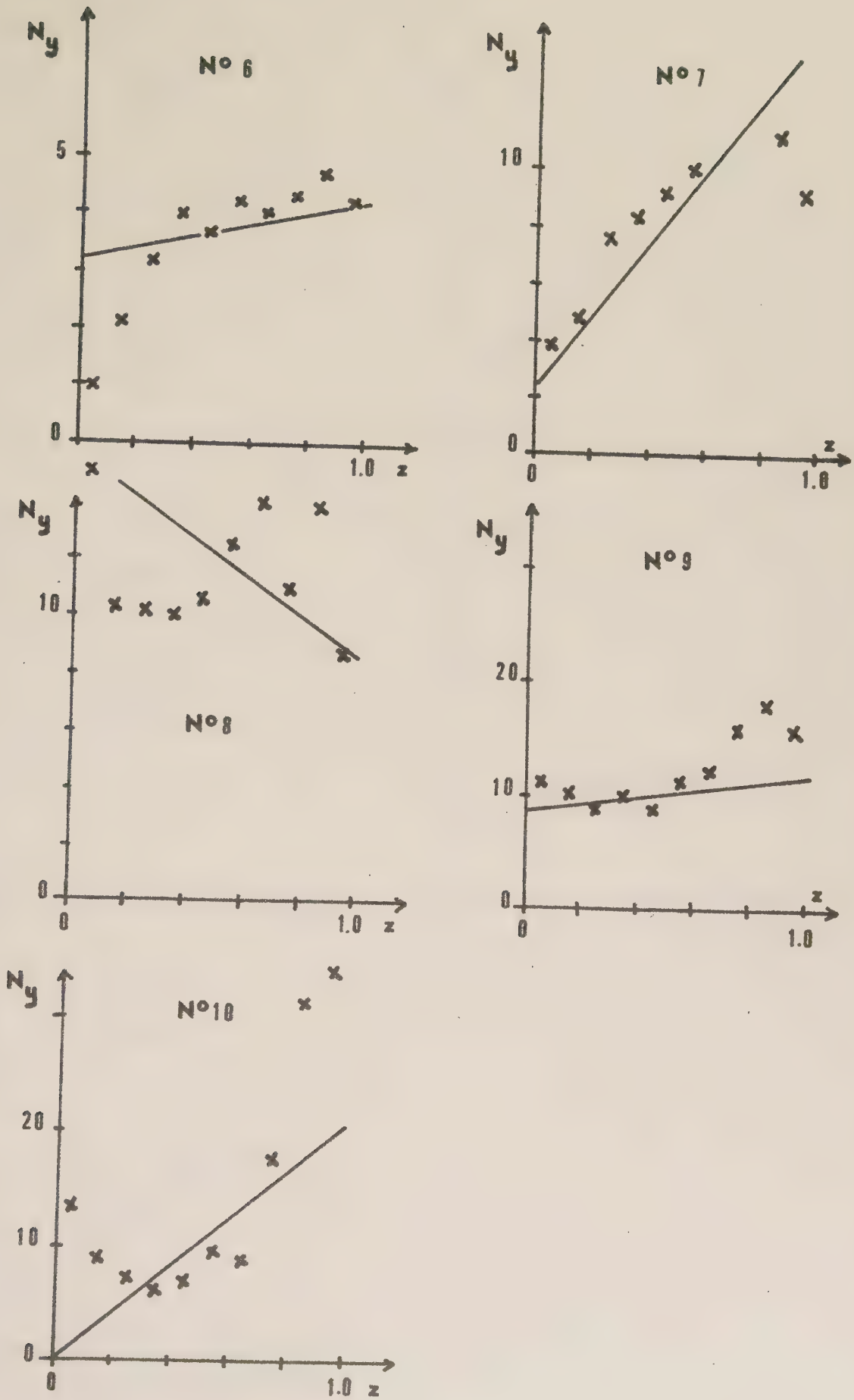


FIGURE 22 - Mesures locales de N_y. Essais 6 à 10 (F = 0,8)

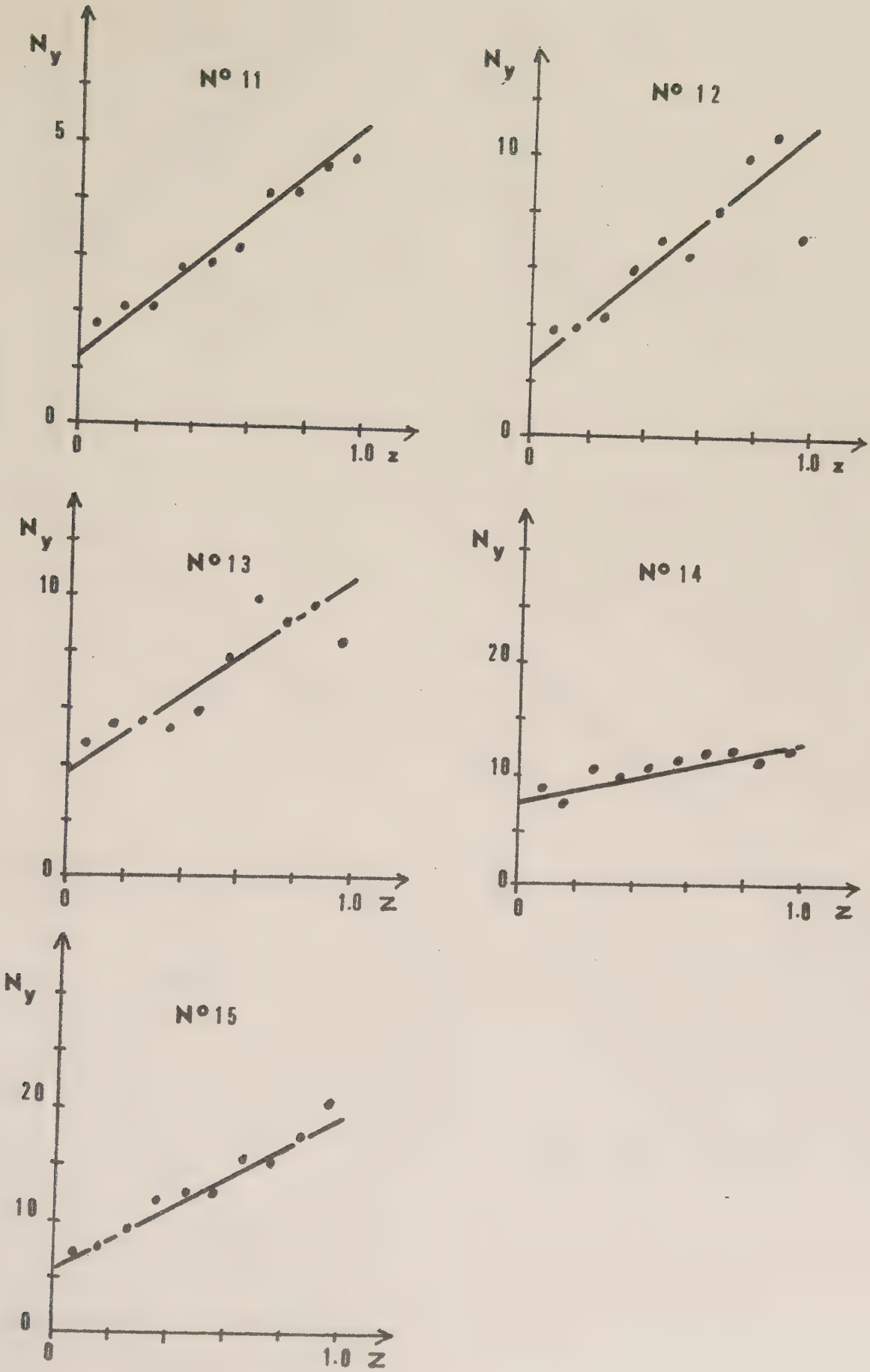


FIGURE 23 - Mesures locales de N_y - Essais 11 à 15 (F = 1,14)

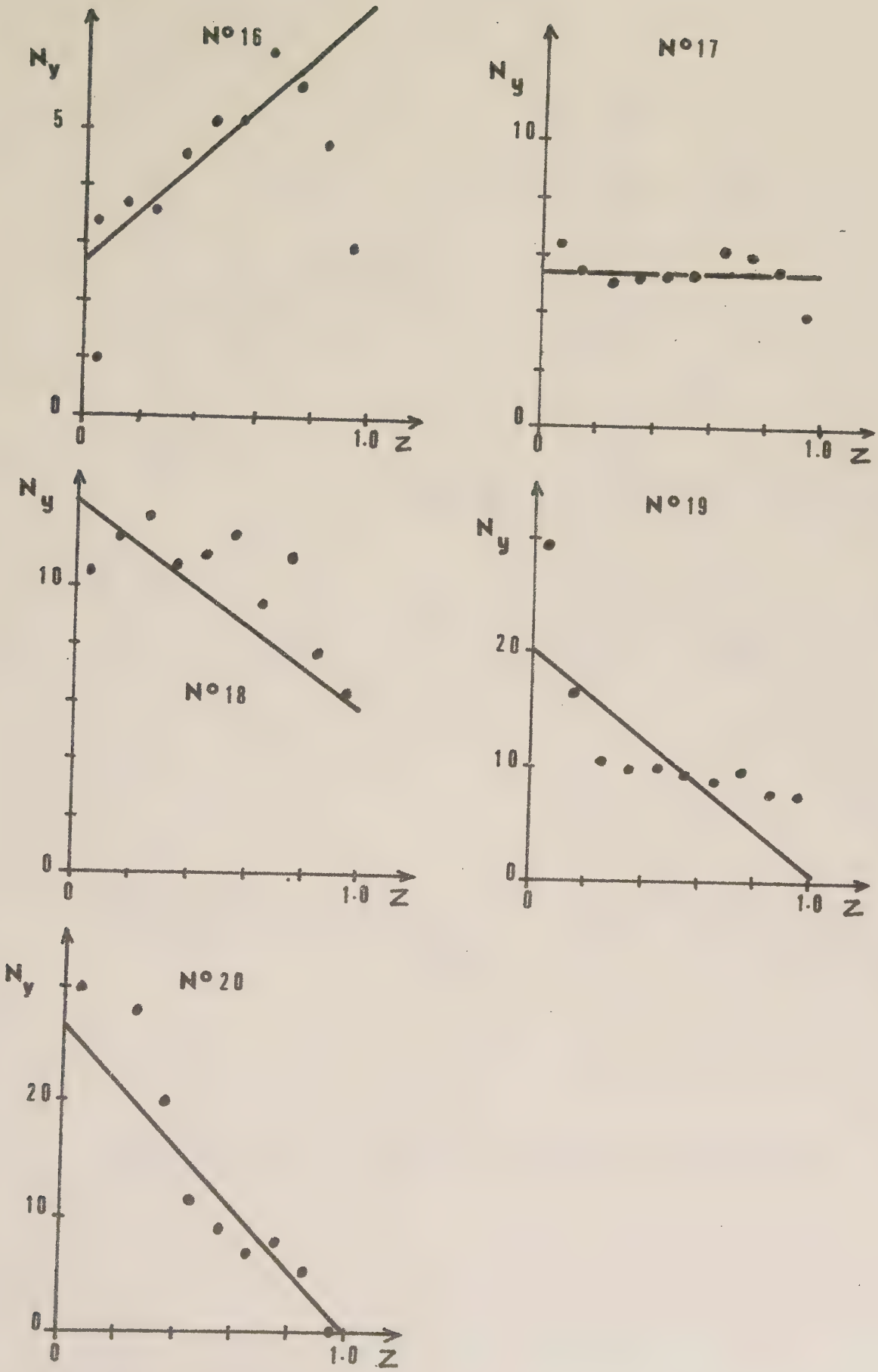


FIGURE 24 - Mesures locales de N_y - Essais 16 à 20 (F = 1,40)

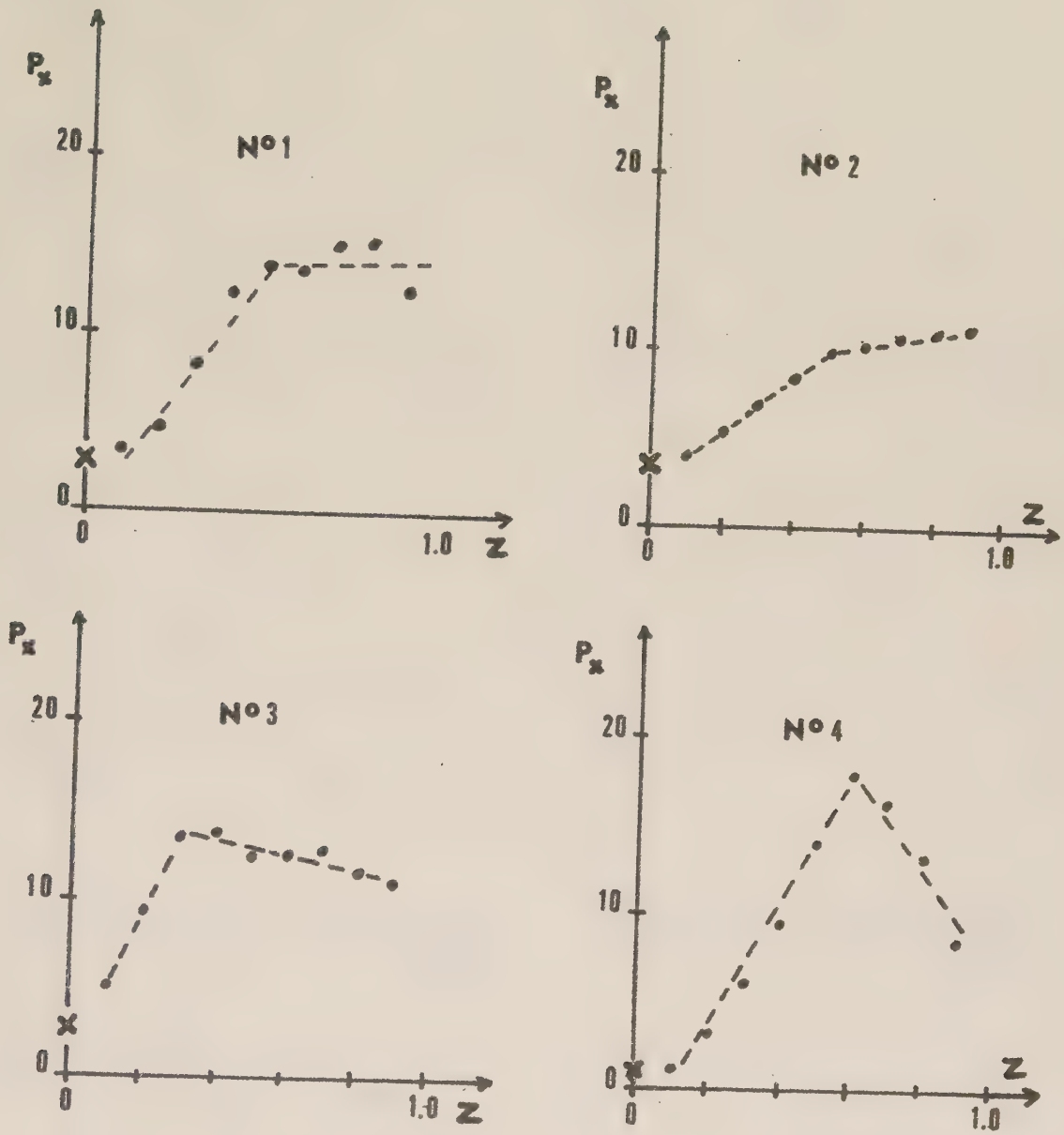


FIGURE 25 - Mesures locales de P_x. Essais 1 à 4 (F = 0,6)

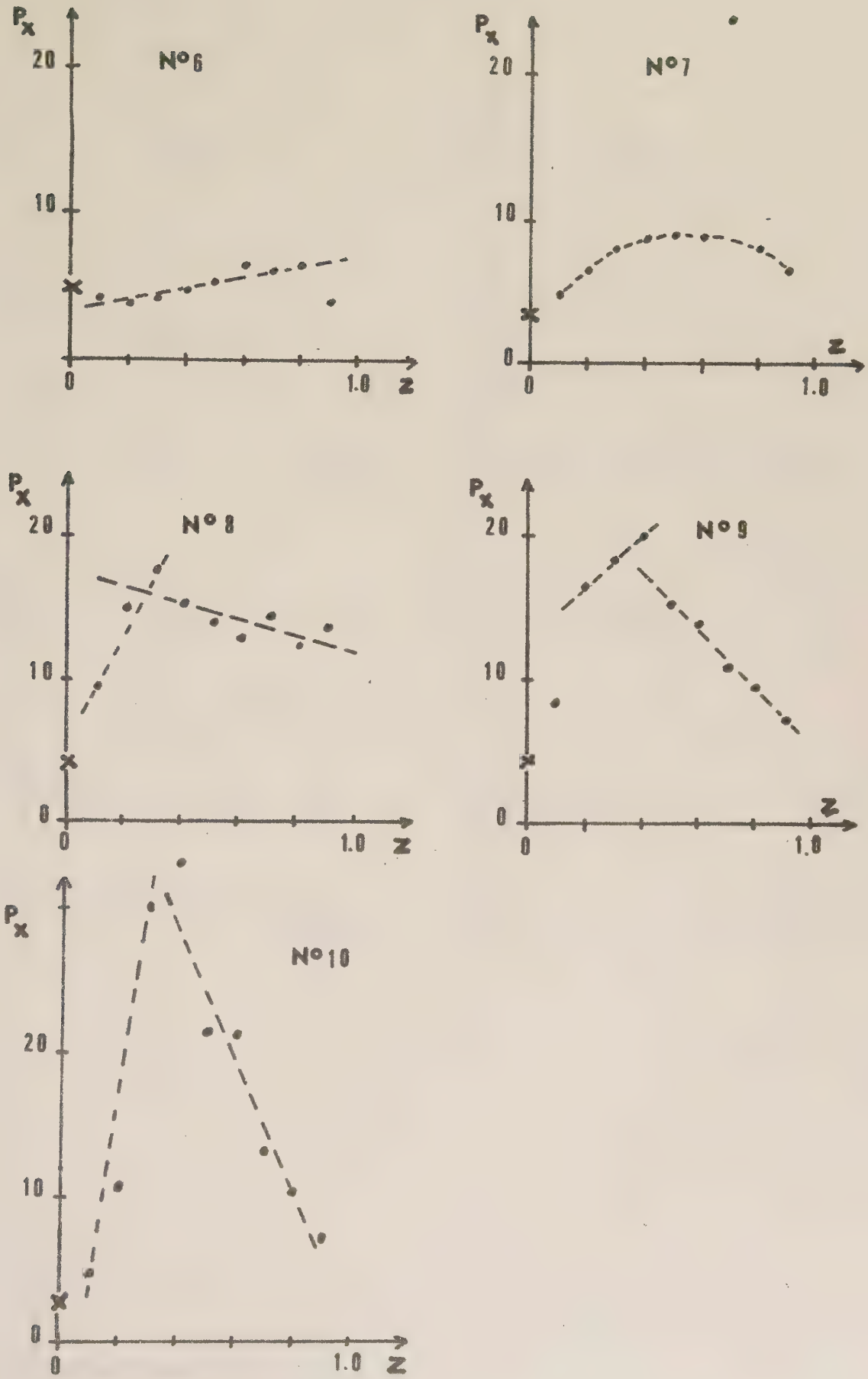


FIGURE 26 - Mesures locales de P_x. Essais 6 à 10 (F = 0,8)

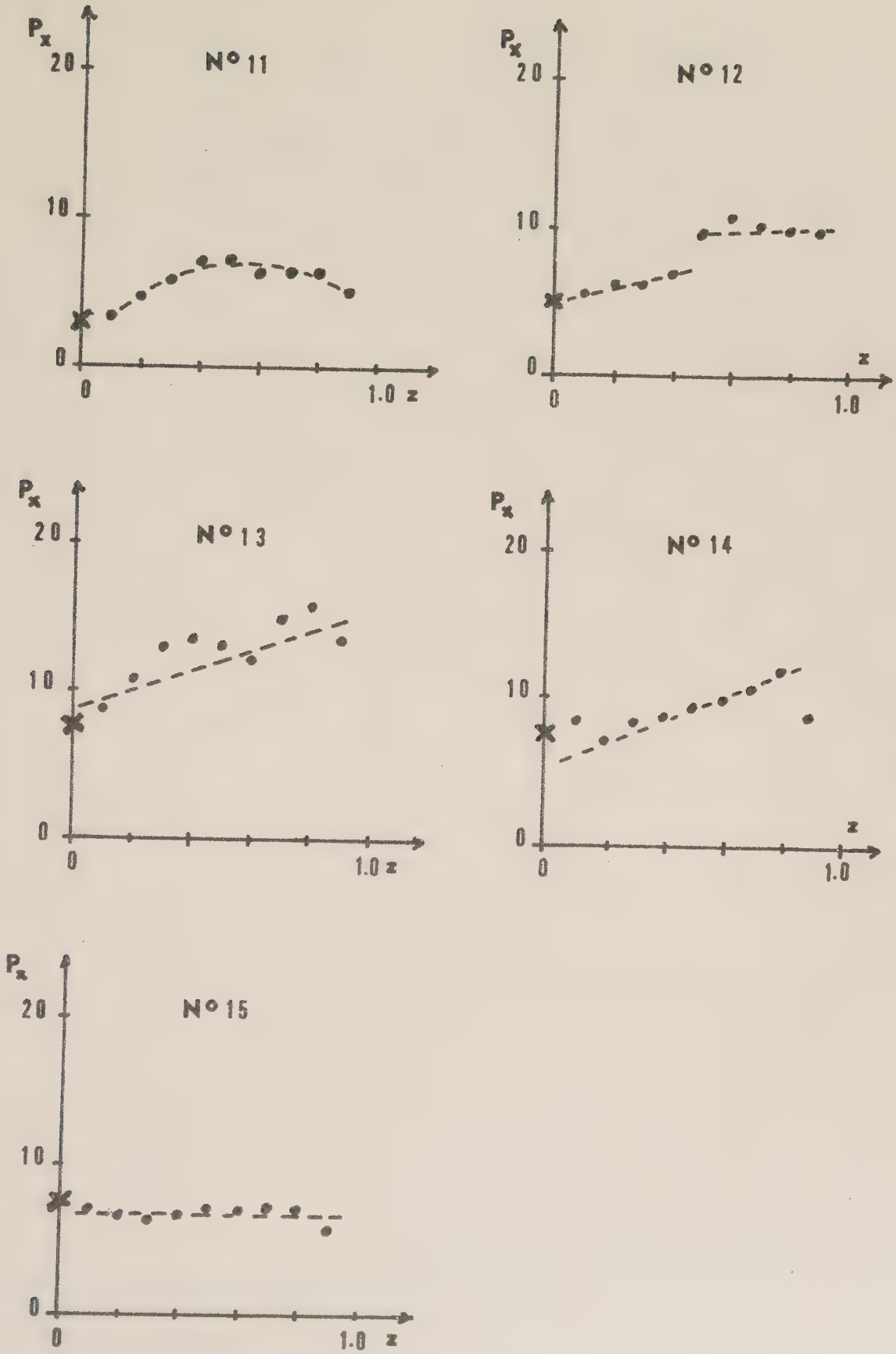


FIGURE 27 - Mesures locales de P_x. Essais 11 à 15 (F = 1,14)

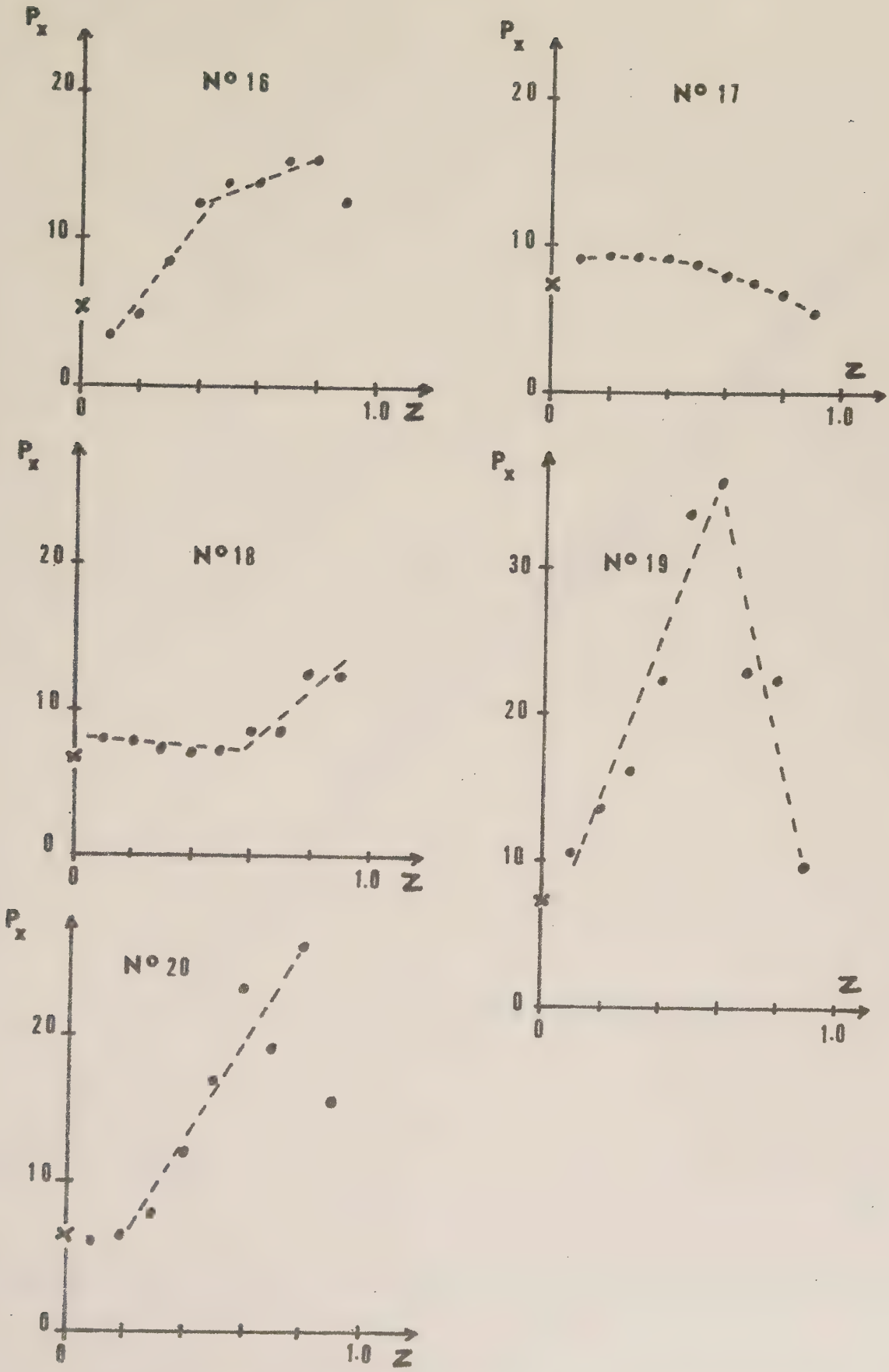


FIGURE 28 - Mesures locales de P_x. Essais 16 à 20 (F = 1,40)

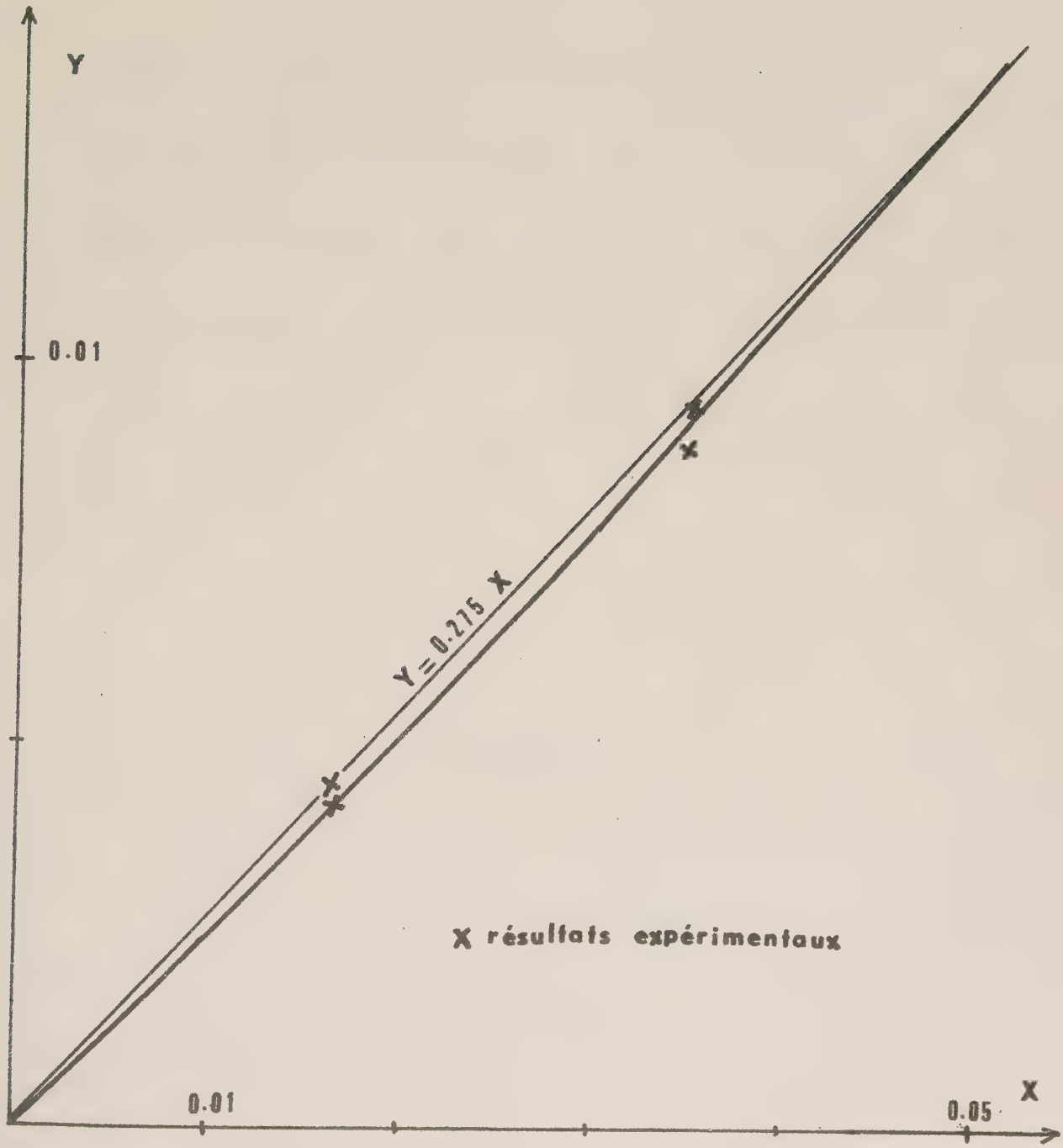


FIGURE 29 - Courbe d'équilibre du système eau-acide acétique-éther isopropylique

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE 1 - Minimisation d'un critère exprimé dans le domaine fréquentiel

ANNEXE 2 - Modèle d'extraction non linéaire

ANNEXE 3 - Fonction de transfert du modèle piston diffusionnel ouvert-ouvert

ANNEXE 4 - Influence du choix du modèle sur l'identification par la méthode des moments.

-:-:-:-:-

ANNEXE 1

MINIMISATION D'UN CRITERE EXPRIME DANS LE DOMAINE FREQUENTIEL

— 0 —

Le traitement des réponses impulsionnelles conduit à minimiser le critère

$$C(\underline{a}) = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} \left| H^*(i\,\Delta f) - H(i\,\Delta f, \underline{a}) \right|^2 \left| E(i\,\Delta f) \right|^2$$

dans lequel $H^*(i\,\Delta f)$ est une fonction de transfert expérimentale et $H(i\,\Delta f, \underline{a})$ celle donnée par le modèle. Cette opération est effectuée à l'aide de l'algorithme de GAUSS-NEWTON en linéarisant le modèle :

$$H(i\,\Delta f, \underline{a} + \underline{\Delta a}) \simeq H(i\,\Delta f, \underline{a}) + \mathrm{grad}^T H(i\,\Delta f, \underline{a})\, \underline{\Delta a}$$

$$H(i\,\Delta f, \underline{a} + \underline{\Delta a}) \simeq H_i + \mathrm{grad}^T H_i\, \underline{\Delta a}$$

Soit par ailleurs $\varepsilon_i = H^*_i - H_i$ et $E_i = E(i\,\Delta f)$; le critère est alors approché par l'expression

$$C(\underline{a} + \underline{\Delta a}) \simeq \sum_i \left| \varepsilon_i - \mathrm{grad}^T H_i\, \underline{\Delta a} \right|^2 \left| E_i \right|^2$$

$$\simeq \sum_i (\varepsilon_i - \mathrm{grad}^T H_i\, \underline{\Delta a})(\overline{\varepsilon}_i - \mathrm{grad}^T \overline{H}_i\, \underline{\Delta a}) \left| (E_i) \right|^2$$

Le critère se met donc sous la forme quadratique

$$C(\underline{a} + \underline{\Delta a}) \simeq C(\underline{a}) - A^T \underline{\Delta a} + \underline{\Delta a}^T B\, \underline{\Delta a}$$

dans laquelle

$$C(\underline{a}) = \sum_i \left| \varepsilon_i \right|^2 \left| E_i \right|^2$$

$$A = \sum_i (\mathcal{E}_i \text{ grad } \overline{H}_i + \overline{\mathcal{E}}_i \text{ grad } H_i) \; |E_i|^2$$

$$B = \sum_i \text{ grad } H_i \text{ grad}^T \overline{H}_i \; |E_i|^2$$

Dans cette forme quadratique A est un vecteur réel, et B une matrice complexe dont la partie imaginaire ne joue aucun rôle puisque tous les termes du critère sont réels. Mis sous cette forme, le critère peut être minimisé à l'aide de l'algorithme de GAUSS-NEWTON. Un sous-programme particulier a été écrit pour effectuer ce traitement. En raison de la symétrie qui existe dans la transformée discrète de FOURIER d'une fonction réelle, seuls les $\frac{N}{2} - 1$ premiers points sont utilisés pour calculer les valeurs du critère.

o

o o

ANNEXE 2

MODELE D'EXTRACTION NON LINEAIRE

— 0 —

Le bilan sur un élément de colonne de longueur Δl est établi à partir des hypothèses suivantes :

1 - Le débit volumique de chaque phase (D_x, D_y) est constant tout au long de la colonne.

2 - La section de passage de chaque phase (A_x, A_y) est variable.

3 - Le mélange longitudinal peut être représenté par un coefficient de diffusion qui est constant tout au long de l'appareil ($\mathcal{D}_x$, $\mathcal{D}_y$).

4 - L'échange entre les phases est traduit par la relation $K_x a \, \Delta l \, (x^* - x)$ dans laquelle K_x est le coefficient global d'échange rapporté à la phase x, à l'aire d'échange par unité de longueur de la colonne et x^* la concentration de la phase x en équilibre avec la phase y. Le produit $K_x a$ varie le long de la colonne.

5 - Dans une section droite de la colonne les concentrations x et y sont uniformes.

Pour la phase x le bilan conduit à la relation

$$D_x \, x(l) - \mathcal{D}_x \, A_x(l) \, \frac{dx}{dl}(l)$$

$$- D_x \, x(l + \Delta l) - \mathcal{D}_x \, A_x(l + \Delta l) \, \frac{dx}{dl}(l + \Delta l)$$

$$+ K_x \, a(l) \, \Delta l \, (x^* - x) = 0 \qquad (1)$$

Δl tendant vers zéro, on obtient l'équation différentielle suivante

$$\frac{\mathcal{D}_x \, A_x(l)}{D_x} \left[\frac{d^2 x}{dl^2} + \frac{1}{A_x} \frac{dA_x}{dl} \frac{dx}{dl} \right] - \frac{dx}{dl} + \frac{K_x a(l)}{D_x} (x^* - x) = 0$$

En définissant une longueur réduite $z = l/L$, cette équation est transformée de manière à faire apparaître deux nombres sans dimension classiques qui sont fonction de la position z : le nombre de PECLET :

$$P_x(z) = \frac{D_x\ L}{A_x(z)\ \mathcal{D}_x} = \frac{U_x\ (z)\ L}{\mathcal{D}_x} \tag{2}$$

et le nombre d'unité de transfert rapporté à la phase x

$$N_x(z) = \frac{K_x a\ (z)\ L}{D_x} \tag{3}$$

$$\frac{1}{P_x(z)}\left[\frac{d^2x}{dz^2} + \frac{1}{A_x}\ \frac{dA_x}{dz}\ \frac{dx}{dz}\right] - \frac{dx}{dz} + N_x(z)\ (x^* - x) = 0 \tag{4}$$

Le même bilan sur la phase y conduit à l'équation

$$\frac{1}{P_y(z)}\left[\frac{d^2y}{dz^2} + \frac{1}{Ay}\ \frac{dA_y}{dz}\ \frac{dy}{dz}\right] + \frac{dy}{dz} - \frac{D_x}{D_y}\ N_x(z)\ (x^* - x) = 0 \tag{5}$$

avec le nombre de PECLET relatif à la phase y

$$P_y(z) = \frac{D_y\ L}{A_y(z)\ \mathcal{D}_y} = \frac{U_y\ (z)\ L}{\mathcal{D}_y} \tag{6}$$

Soit le système d'équations :

$$\left.\begin{aligned} &\frac{1}{P_x(z)}\left[\frac{d^2x}{dz^2} + \frac{1}{A_x}\ \frac{dA_x}{dz}\ \frac{dx}{dz}\right] - \frac{dx}{dz} + N_x(z)\ (x^* - x) = 0 \\ &\frac{1}{P_y(z)}\left[\frac{d^2y}{dz^2} + \frac{1}{Ay}\ \frac{dA_y}{dz}\ \frac{dy}{dz}\right] + \frac{dy}{dz} - \frac{D_x}{D_y}\ N_x(z)\ (x^* - x) = 0 \end{aligned}\right\} \tag{7}$$

Les conditions aux limites, obtenues par un bilan à chaque extrémité de l'appareil en supposant qu'il n'y a pas de mélange longitudinal en dehors de la colonne, sont analogues à celles de DANCKWERTS :

$$\left.\begin{array}{lll} x_e = x(0) - \dfrac{1}{P_x(0)} \dfrac{dx}{dz}(0) & ; \quad \dfrac{dx}{dz}(1) = 0 & ; \quad x(1) = x_S \\ y_e = y(1) + \dfrac{1}{P_y(1)} \dfrac{dy}{dz}(1) & ; \quad \dfrac{dy}{dz}(0) = 0 & ; \quad y(0) = y_S \end{array}\right\} \quad (8)$$

x_e, y_e et x_S, y_S sont les concentrations dans les courants d'entrée et de sortie de la colonne.

Quand la retenue de phase dispersée est constante le long de la colonne, les sections de passage A_x et A_y sont constantes et le système d'équations se ramène au modèle classique de MIYAUCHI et de SLEICHER

$$\left.\begin{array}{l} \dfrac{1}{P_x} \dfrac{d^2x}{dz^2} - \dfrac{dx}{dz} + N_x (x^* - x) = 0 \\ \dfrac{1}{P_y} \dfrac{d^2y}{dz^2} + \dfrac{dy}{dz} - \dfrac{D_x}{D_y} N_x (x^* - x) = 0 \end{array}\right\} \quad (9)$$

Les nombres de PECLET P_x et P_y sont constants sur toute la colonne, le nombre d'unité de transfert pouvant encore être variable.

<u>Remarque 1</u>

Quand la relation d'équilibre entre les phases est linéaire, $y = mx$, les équations se mettent sous une forme plus symétrique : le terme d'échange dans l'équation en y s'écrit :

$$- \frac{D_x}{D_y} N_x (x^* - x) = \frac{1}{m} \frac{D_x}{D_y} N_x (y^* - y)$$

Cette forme fait apparaître le facteur d'extraction

$$F = \frac{m\ Dy}{Dx} \tag{10}$$

Remarque 2

Quand le mélange longitudinal est négligeable, la variation de retenue, donc de section de passage d'une phase, n'intervient plus dans l'équation de cette phase.

Remarque 3

En introduisant la retenue en phase y au niveau z de la colonne $\varphi(z)$, il est possible de faire disparaître de l'équation (9) les sections de passage. En appelant A_T la section droite de la colonne, la retenue s'écrit

$$\varphi(z) = \frac{A_y(z)}{A_T} \quad \text{d'où} \quad \frac{1}{A_y}\ \frac{dA_y}{dz} = \frac{1}{\varphi(z)}\ \frac{d\varphi}{dz} \tag{11}$$

de même, la section de passage $A_x(z)$ s'écrit

$$A_x(z) = A_T(1 - \varphi) \quad \text{d'où} \quad \frac{1}{A_x}\ \frac{dA_x}{dz} = -\frac{1}{1-\varphi}\ \frac{d\varphi}{dz} \tag{12}$$

Les équations (9) prennent alors la forme suivante :

$$\left.\begin{aligned} &\frac{1}{P_x(z)}\left[\frac{d^2x}{dz^2} - \frac{1}{1-\varphi}\ \frac{d\varphi}{dz}\ \frac{dx}{dz}\right] - \frac{dx}{dz} + N_x\ (x^* - x) = 0 \\ &\frac{1}{P_y(z)}\left[\frac{d^2y}{dz^2} + \frac{1}{\varphi}\ \frac{d\varphi}{dz}\ \frac{dy}{dz}\right] + \frac{dy}{dz} - \frac{D_x}{D_y}\ N_x\ (x^* - x) = 0 \end{aligned}\right\} \tag{13}$$

et les nombres de PECLET s'expriment en fonction de l'aire totale de passage A_T :

$$P_x(z) = \frac{D_x L}{A_T (1 - \varphi) \mathcal{D}_x} \qquad P_y(z) = \frac{D_y L}{A_T \varphi_y} \tag{14}$$

o

o o

ANNEXE 3

FONCTION DE TRANSFERT DU MODELE PISTON DIFFUSIONNEL OUVERT-OUVERT

— 0 —

Ce modèle a pour équation

$$\frac{1}{P_e}\frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{\partial C}{\partial z} = \tau \frac{\partial C}{\partial t} \qquad (1)$$

avec les conditions aux limites suivantes

$$C(0, z) = \delta(z) \qquad \text{et} \qquad C(z, t) \longrightarrow 0$$
$$z \longrightarrow \pm\infty$$

La première condition indique qu'au temps t = 0, une impulsion de traceur a été injectée au point d'abscisse z = 0.

Introduisons la transformée de LAPLACE par rapport au temps $\hat{C}(z, p)$, l'équation devient

$$\frac{1}{P_e}\frac{\partial^2 \hat{C}}{\partial z^2} - \frac{\partial \hat{C}}{\partial z} = \tau p \hat{C} - \tau \delta(z) \qquad (2)$$

Introduisons la transformée de LAPLACE de $\hat{C}$ (z, p) par rapport à z, $\hat{\hat{C}}$ (S , p) ; celle-ci a pour expression

$$\hat{\hat{C}}(S, P) = \hat{C}(0, p) \frac{S}{S^2 - P_e S - \tau p P_e}$$
$$+ \left[\frac{\partial \hat{C}}{\partial z}(0,p) - P_e \hat{C}(0,p) - \tau P_e\right] \frac{1}{S^2 - P_e S - \tau p P_e}$$

Le polynome $S^2 - P_e S - \tau p P_e$ a deux racines qui sont

$$a = \frac{P_e}{2}\left[1 + \sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P}}\right] \qquad b = \frac{P_e}{2}\left[1 - \sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}\right]$$

La partie réelle de a est toujours positive ($\forall$ p), alors que celle de b est négative. La transformation inverse par rapport à la variable S donne une expression de $\hat{C}$ (z,p) valable pour $z \geqslant 0$.

$$\hat{C}(z,p) = \frac{e^{bz}}{b-a}\left[b\,\hat{C}(0,p) + \frac{\partial \hat{C}}{\partial z}(0,p) - P_e\,\hat{C}(0,p) - P_e\,\tau\right]$$

$$- \frac{e^{az}}{b-a}\left[a\,\hat{C}(0,p) + \frac{\partial \hat{C}}{\partial z}(0,p) - P_e\,\hat{C}(0,p) - P_e\,\tau\right] \qquad (4)$$

Cette transformée de FOURIER doit s'annuler quand z tend vers $+\infty$, l'expression en facteur de e^{az} est donc nulle. L'expression de $\hat{C}$ (z,p) se réduit alors

$$\hat{C}(z,p) = \exp\left[\frac{P_e}{2} z \left(1 - \sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}\right)\right] \hat{C}(0,p) \qquad (5)$$

D'où l'expression de la fonction de transfert

$$H(p) = \frac{\hat{C}(1,p)}{\hat{C}(0,p)} = \exp\left[\frac{P_e}{2}\left(1 - \sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}\right)\right] \qquad (6)$$

<u>Remarque 1</u>

L'expression de $\hat{C}$ (z,p) n'est valable que pour $z \geqslant 0$, il n'est donc pas possible d'utiliser la condition $\hat{C}(z,t) \longrightarrow 0$ quand $z \longrightarrow -\infty$.

Remarque 2

La condition initiale $C(0,z) = \delta(z)$ n'a pas été utilisée jusqu'ici. Elle n'intervient que dans la suite.

Pour calculer la réponse du système à une impulsion il faut utiliser la condition aux limites concernant les abscisses négatives. Pour cela, considérons la fonction

$$X(q,t) = C(-z, t)$$

Elle est définie par l'équation

$$\frac{1}{P_e} \frac{\partial^2 X}{\partial q^2} + \frac{\partial X}{\partial q} = \tau \frac{\partial X}{\partial t} \tag{7}$$

qui, après une première transformation de LAPLACE devient

$$\frac{1}{P_e} \frac{\partial^2 \hat{X}}{\partial q^2} + \frac{\partial \hat{X}}{\partial q} = \tau p \hat{X} - \tau \delta(q) \tag{8}$$

Lors de la deuxième transformation de LAPLACE appliquée à l'équation (2), la transformée de $\delta(z)$ a été prise égale à 1. Ceci suppose que $\delta(z)$ se trouve dans le demi-espace $[0 + \infty[$. En conséquence il ne se trouve pas dans le demi-espace complémentaire considéré ici, et $\mathcal{L}[\delta(q)] = 0$. La deuxième transformation de LAPLACE, appliquée à l'équation (8) conduit à l'expression

$$\hat{\hat{X}}(s, p) = \hat{X}(0,p) \frac{s}{s^2 + P_e s - \tau p P_e}$$

$$+ \left[\frac{\partial \hat{X}}{\partial z}(0,p) + P_e \hat{X}(0,p)\right] \frac{1}{s^2 + sP_e - \tau p P_e} \tag{9}$$

Le polynôme $s^2 + P_e s - \tau p P_e$ a deux racines qui sont

$$\alpha = \frac{P_e}{2}\left[-1 + \sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}\right] \text{ et } \beta = \frac{P_e}{2}\left[-1 - \sqrt{1 + \frac{4\tau p}{P_e}}\right]$$

La partie réelle de α est toujours positive, celle de β étant négative. La transformation inverse par rapport à S donne une expression de $\hat{X}(q,p)$ valable pour $q > 0$

$$\hat{X}(q,p) = \frac{e^{\alpha q}}{\alpha - \beta}\left[\alpha \hat{X}(0,p) + \frac{\partial \hat{X}}{\partial z}(0,p) + P_e \hat{X}(0,p)\right]$$

$$- \frac{e^{\beta q}}{\alpha - \beta}\left[\beta \hat{X}(0,p) + \frac{\partial \hat{X}}{\partial z}(0,p) + P_e \hat{X}(0,p)\right] \qquad (10)$$

Cette transformée doit tendre vers zéro quand $q \longrightarrow +\infty$, l'expression en facteur de $e^{\alpha q}$ est donc nulle

$$(P_e + \alpha)\hat{X}(0,p) + \frac{\partial \hat{X}}{\partial z}(0,p) = 0 \qquad (11)$$

En raison de la continuité de la fonction C (0,t) on a

$$\hat{X}(0,p) = \hat{C}(0,p) \quad \text{et} \quad \frac{\partial \hat{X}}{\partial z}(0,p) = - \frac{\partial \hat{C}}{\partial z}(0,p)$$

d'où :

$$(P_e + \alpha)\hat{C}(0,p) - \frac{\partial \hat{C}}{\partial z}(0,p) = 0 \qquad (12)$$

En rapprochant cette relation de celle obtenue à partir de l'expression (4),

$$(a - P_e)\hat{C}(0,p) + \frac{\partial \hat{C}}{\partial z}(0,p) - P_e \tau = 0 \qquad (13)$$

il est possible d'en déduire que

$$\hat{C}(0,p) = \frac{P_e \tau}{a + \alpha} = \frac{\tau}{\sqrt{1 + \frac{4 \tau p}{P_e}}}$$

D'où :

$$\hat{C}\,(1,p) = \frac{\tau \;\exp\left[\frac{P_e}{2}\left(1 - \sqrt{1 + \frac{4\,\tau\,p}{P_e}}\right)\right]}{\sqrt{1 + \frac{4\,\tau\,p}{P_e}}}$$

Cette expression est identique à celle donnée dans le texte principal, à la constante τ près. Celle-ci peut toutefois être négligée car la quantité de traceur présente initialement, δ (z), n'est connue elle aussi qu'à une constante près.

o

o o

ANNEXE 4

INFLUENCE DU CHOIX DU MODELE SUR L'IDENTIFICATION PAR LA METHODE DES MOMENTS

— 0 —

Lorsqu'on calcule les deux premiers moments d'une réponse impulsionnelle expérimentale, on obtient deux valeurs μ_1 et σ^2. Les relations qui lient ces valeurs aux paramètres des diverses formes du modèle piston diffusionnel, et à ceux du modèle à bacs en cascade sont les suivantes :

Modèle fermé-fermé

$$\mu_1 = \tau_{FF}$$

$$\sigma^2 = \tau_{FF}^2 \quad \frac{2}{P_{FF}} \left(1 - \frac{1}{P_{FF}} \left(1 - e^{-P_{FF}}\right)\right)$$

Modèle fermé-ouvert

$$\mu_1 = \tau_{FO} \left(1 + \frac{1}{P_{FO}}\right)$$

$$\sigma^2 = \tau_{FO}^2 \quad \frac{2}{P_{FO}} \left(1 + \frac{1.5}{P_{FO}}\right)$$

Modèle ouvert-ouvert

$$\mu_1 = \tau_{OO} \left(1 + \frac{2}{P_{OO}}\right)$$

$$\sigma^2 = \tau_{OO}^2 \quad \frac{2}{P_{OO}} \left(1 + \frac{4}{P_{OO}}\right)$$

Modèle à bacs en cascade

$$\mu_1 = \tau_{NBC}$$

$$\sigma^2 = \tau_{NBC}^2 \quad \frac{1}{N}$$

Lorsque les réponses impulsionnelles de deux modèles ont leurs deux premiers moments identiques, il existe les relations suivantes entre leurs paramètres :

<u>Modèle fermé-fermé</u> ; <u>modèle fermé-ouvert</u>

$$\mu_{FF} = \mu_{FO} \Longrightarrow \tau_{FF} = \tau_{FO}\left(1 + \frac{1}{P_{FO}}\right)$$

$$\sigma^2_{FF} = \sigma^2_{FO} \Longrightarrow \tau^2_{FF}\ \frac{2}{P_{FF}}\left[1 - \frac{1}{P_{FF}}\left(1 - e^{-P_{FF}}\right)\right] = \tau^2_{FO}\ \frac{2}{P_{FO}}\left(1 + \frac{1.5}{P_{FO}}\right)$$

En combinant ces deux relations, et en supposant $e^{-P_{FF}}$ négligeable devant 1, on obtient :

$$\frac{1}{P_{FF}}\left(1 - \frac{1}{P_{FF}}\right) = \frac{1}{P_{FO}}\ \frac{1 + \frac{1.5}{P_{FO}}}{\left(1 + \frac{1}{P_{FO}}\right)^2}$$

Si $\frac{1}{P_{FF}}$ est petit devant 1, la relation suivante est une bonne approximation

$$\frac{1}{P_{FF}}\left(1 - \frac{1}{P_{FF}}\right) = \frac{1}{P_{FO}}\left(1 - \frac{0.5}{P_{FO}}\right)$$

Soit

$$\frac{P_{FO}}{P_{FF}} = \frac{1 - \frac{0.5}{P_{FO}}}{1 - \frac{1}{P_{FF}}}$$

Comme les deux nombres de PECLET sont voisins,

$$1 - \frac{0.5}{P_{FO}} \simeq 1 - \frac{0.5}{P_{FF}}$$

D'où :

$$\frac{P_{FO}}{P_{FF}} \simeq 1 + \frac{0.5}{P_{FF}}$$

et

$$P_{FO} \simeq P_{FF} + 0.5$$

Autres modèles

La même méthode de calcul a conduit à établir les diverses relations qui figurent dans le texte principal.

-:-:-:-:-:-:-

DEUXIEME SUJET DE THESE

SIMULATION NUMERIQUE ET OPTIMISATION :

ETUDE D'UN REACTEUR D'OXYDATION D'ETHYLENE

— 0 —